A doktori (Ph.D.) értekezés tézisei

Reaktív nanorészecskéket tartalmazó réteges szerkezetek és ultravékony filmek fotokatalitikus tulajdonságai

Kun Róbert

Témavezető: Dr. Dékány Imre
Tanszékvezető egyetemi tanár, az MTA levelező tagja

Szegedi Tudományegyetem
Kolloidkémiai Tanszék
Szeged, 2006

Bevezetés, célkitűzések

A nanotechnológia napjaink egyik legdinamikusabban és leglátványosabban fejlődő tudományága, mely a modern kémiai, fizikai és sok esetben a biológiai tudományok határára helyezhető. A széleskörű kutatások eredményeképpen számos kémiai, fizikai és biológiai, ill. orvos biológiai probléma megoldása vált, ill. válik lehetővé. A kutatások fő iránya gyakran a nanoszerkezetű anyagok előállítása és azok vizsgálata, amely a tapasztalatok szerint elmélyült kolloidkémiai ismereteket igényel. A szabályozott kolloidkémiai előállítási módszerek, mint a szol-gél eljárás lehetőséget adnak arra, hogy szabályozott részecskeméretű, nagy fajlagos felületű, eltérő kristályossági fokot mutató termékeket állítsunk elő. A kicsiny mérettel, ugyanakkor nagy felületi energiával rendelkező nanorészecskéket hordozó anyagok külső, ill. belső felületein rögzítve stabilizálhatjuk, ezzel elkerülhető a részecskék önként végbemenő aggregációja, továbbá nagy fajlagos felülettel jellemezhető nanokompozit anyagok állíthatók elő. A nanorészecskék, ill. a nanoszerkezetű anyagok gyakorlati jelentősége abban áll, hogy szerkezetüknek köszönhetően szokatlan elektromos és katalitikus tulajdonságokkal rendelkezhetnek, ezen kívül a különleges optikai tulajdonságokat is mutatnak. A félvezető anyagokból előállított nanométerű részecskék megfelelő körülmények között hatékonyan alkalmazhatók a napenergia kémiai energiává történő alakításában, továbbá a környezetükben lévő szerves molekulák oxidációjában. E tulajdonságokat hasznosítja a nagyhatékonyságú oxidációs eljárások legdinamikusabban fejlődő területe az ún. heterogén fotokatalízis.

A környezetszennyezés világméretű problémáját sokan és sokféleképpen próbálták megoldani. A ma ismert, és iparszerűen alkalmazott víztisztítási eljárásokkal sok esetben lehetetlen a vízben, oldott formában jelen lévő, biológiailag nem lebomló szerves molekulák eltávolítása. Ezen anyagok káros mutációkat okozhatnak a természetben és nem ritkán rákos megbetegedések kiváltó okai lehetnek. A heterogén fotokatalízis kutatásával foglalkozó szakemberek célja, hogy a korlátlanul rendelkezésünkre álló napfény energiáját felhasználva eltávolítsák a vizes közegben jelenlevő szerves anyagokat az általuk optimalizált körülmények között előállított, fotokatalitikusan aktív anyagok felhasználásával. A titán-dioxid, mint potenciális fotokatalizátor anyag előnyös fizikai és kémiai tulajdonságai miatt a kutatások középpontjába került. Emellett természetesen számos félvezető anyagot (pl. ZnO, SnO_2, ZrO_2) vizsgáltak és minősítettek fotokatalitikus kísérletekben. A réteges kettős hidroxidokat, mint lehetséges adszorbens-fotokatalizátor rendszereket csak az utóbbi időkben kezdték intenzíven kutatni. Jóllehet az anyagcsoport régóta ismert, de eddig inkább a gyógyászat és az ipar használta ki annak előnyös tulajdonságait. A réteges kettős hidroxidokat egyszerűen és olcsó kiindulási anyagokból elő lehet állítani, továbbá jelentős fotokatalitikus aktivitást mutathatnak összetételüktől és az előállítási

körülményeiktől függően, ami tovább növeli jelentőségüket, mindemellett a természetbe kijutva semmiféle veszélyt nem hordoznak.

A fotokatalitikus víztisztítási eljárások ipari méretekben történő megvalósítása nehézkes és eddig nem sok eredménnyel szolgált, mivel a szuszpendált katalizátor anyagok visszanyerése a megtisztított folyadékfázisból rendkívüli mértékben drágítja a technológiát (a katalizátor szűrése, mosása, regenerálása).

E probléma kiküszöbölhető, valamint lehetőség nyílik az áramló rendszerekben, minimális katalizátor veszteséggel megvalósított víztisztítás, ha a katalizátor anyagot vékony rétegek, azaz filmek formájában juttatjuk a megtisztítandó vizekbe.

Munkám célja volt, pórusos szerkezetű, nagy fajlagos felülettel rendelkező anatáz titán-dioxid nanorészecskék előállítása, azok rétegszilikát lamellákon történő stabilizálása, majd a kialakított nanokompozitok részletes anyagszerkezeti és fotokatalitikus tulajdonság vizsgálata. Célul tűztem ki, hogy megállapítsam miként hat a rétegszilikát hordozó a nanokompozitok optikai, és fotokatalitikus tulajdonságaira, továbbá a fotooxidációs folyamat során változtatott paraméterek, mint pl. a nanokompozitok félvezető tartalma, a szuszpenziók töménysége, az alkalmazott ionerősség hogyan befolyásolja a fotokatalitikus hatékonyságot.

Célkitűzésem volt továbbá olyan réteges szerkezetű kettős hidroxid minták előállítása, melyek tartalmaznak fotokatalitikusan aktív cink-oxid komponenst. A minták készítése során alkalmazott paraméterek, mint hőmérséklet és öregítési idő szerkezetre és kémiai összetételre gyakorolt hatását is vizsgálni szándékoztam.

A réteges kettős hidroxidokból, ill. Degussa P25 TiO_2-ból, különböző bemerítési ciklusszámokkal jellemezhető vékonyrétegeket igyekeztem előállítani, melyek felépülését és szerkezetét független módszereket alkalmazva minősítettem. A különböző anyagokból felépített és eltérő rétegvastagságokkal jellemezhető filmek fotokatalitikus hatékonyságát festékanyag fotokatalitikus lebontásában kívántam összehasonlítani.

Célom volt, hogy megállapítsam, szuszpenziók avagy vékonyrétegek alkalmazásával lehetséges-e jelentősebb fotoktalitikus hatékonyságot elérni. Távolabbi célom az volt, hogy olyan kémiailag és mechanikailag stabil filmeket állítsak elő, melyek egyszerűen, gyorsan regenerálhatók, és egymás után többször fel lehet használni azokat fotooxidációs lebontások során.

Kísérleti anyagok és módszerek

A réteges szerkezetű, fotokatalitikusan aktív anyagok egyik csoportja esetében hidrotermális szol-gél módszerrel előállított titán-dioxid szolt és frakcionált Na-montmorillonitból készített szuszpenziót használtam az ún. heterokoagulációs kompozit képzések során.

A réteges kettős hidroxid anyagokat ún. együtt lecsapásos módszerrel állítottam elő, mely során alumínium-, és cink-sók keverékének oldatát elegyítettem erősen lúgos kémhatású, nitrát-ionokat tartalmazó oldattal. A lecsapási folyamat hőmérsékletét és a keletkezett szuszpenziók öregítési idejét szabályoztam.

A nanokompozit, ill. a réteges kettős hidroxid minták fotokatalitikus hatékonyságát diklór-ecetsav és narancs-akridin modellvegyületek lebontásában teszteltem. A kísérleteim során használt vegyszerek analitikai, ill. reagens tisztaságúak voltak. Előállítási közegként, ill. oldószerként minden esetben nagytisztaságú, ioncserélt vizet használtam.

Az előállított minták szerkezetvizsgálatához, valamint a bennük levő kristályfázisok azonosításához röntgendiffrakciós (XRD) módszert használtam.

A nanokompozit minták nanoszerkezetének vizsgálatához kisszögű röntgenszórás (SAXS) méréstechnikát alkalmaztam.

Az alacsony hőmérsékletű nitrogén adszorpciós technikával fajlagos felületet, ill. a porozitásra jellemző adatokat határoztam meg.

A nanokompozitok hordozó anyagának, ill. a réteges kettős hidroxid minták részecskéinek morfológiai jellemzését transzmissziós-, és pásztázó elektronmikroszkópos (TEM/SEM) vizsgálatokkal végeztem.

Bizonyos minták esetében a termoanalitikai (TG/DTA) méréseket követően vontam le a szerkezetre, ill. a kémiai összetételre vonatkozó következtetéseket.

A TiO_2/rétegszilikát nanokompozit anyagok gyakorlati titán-dioxid tartalmát, a minták feltárása után ICP-OES módszerrel határoztam meg.

A fotokatalizátor anyagok optikai tulajdonságait UV-Vis spektrofotometriás módszerrel vizsgáltam.

Réteges kettős hidroxid anyagokból, valamint referenciaként használt Degussa gyártmányú P25 titán-dioxidból bemerítéses technikával vékonyrétegeket állítottam elő, mely során a filmek felépülését UV-Vis spektrofotometriával, valamint bizonyos esetben atomi erő mikroszkópiával (AFM) követtem.

Az előbbiekben bemutatott vizsgálati módszerek mellett szilárd fázisú sűrűség meghatározást, áramlási potenciál-, és dinamikus fényszórási vizsgálatokat is végeztem bizonyos minták esetében.

A fotokatalitikus hatékonyság vizsgálatoknál saját fejlesztésű, nagynyomású higanygőz lámpával felszerelt, ún. fénykamrát használtam.

Reaktorokként pyrex üvegből készült termosztálható, duplafalú eszközöket használtam. A vékony rétegek alkalmazásával végzett fotooxidációs kísérleteknél a festékmolekula koncentrációjának követésére áramlásos rendszerben megvalósított UV-Vis spektrofotometriát használtam.

A nanokompozitokkal végzett fotokatalitikus reakciókban a diklór-ecetsav modellvegyület koncentráció változásának követését pH mérés útján megvalósított pH-stat technikával végeztem. Külső mérőcellába helyezett kombinált üvegelektród segítségével, a megvilágított szuszpenzió kémhatását állandó jelleggel követtem, szintén áramlásos rendszerben. A fotooxidáció hatására bekövetkező pH csökkenés kompenzálását, ill. a szuszpenziók állandó kémhatásának fenntartását házi fejlesztésű, ún. pH-stat rendszerrel valósítottam meg.

Az új tudományos eredmények tézisszerű összefoglalása

I. A TiO_2/rétegszilikát nanokompozitokra vonatkozó eredmények

1. A szol-gél módszerrel előállított TiO_2 nanorészecskék szerkezeti tulajdonságai

A hidrotermális szol-gél módszerrel előállított 80-90 nm átmérőjű TiO_2 részecskék kis méretű (4-5 nm) nanorészecskékből képződött aggregátumokból épülnek fel. A titán-dioxid anatáz formában fordul elő, melyet röntgendiffrakciós vizsgálattal bizonyítottam. A Scherrer-formulával számított primer részecskék átlagos mérete 4,7 nm. A minta pórusos szerkezetű, melyet röntgendiffrakciós, kisszögű röntgenszórási, továbbá nitrogén adszorpciós vizsgálatok is bizonyítottak. A TiO_2 minta fajlagos felülete 260 m^2/g, és az aggregátumokban jelenlevő pórusok átlagos átmérője 3,4 nm. Az adatokból arra következtethetünk, hogy a szol-gél módszerrel előállított nanorészecskék aggregátumok, amelyek alkotóelemei felelősek a TiO_2 optikai viselkedéséért. A nagy fajlagos felületű és nanopórusos TiO_2 esetén a spekrofotometriás mérések szerint meghatározott λ_g = 397 nm, amely E_g = 3,12 eV értéknek felel meg.

2. A TiO_2/rétegszilikát kompozitok szerkezetére vonatkozó megállapítások

A montmorillonit és a TiO_2 nanorészecskék heterokoagulációja során a titán-dioxid szolban lévő nagyobb részecske aggregátumok a szuszpenzióban lévő szilikát lamellák elektrosztatikus terében dezaggregálódnak és kb. 4 nm-es átlagos mérettel jellemezhető anatáz titán-dioxid primer részecskék épülnek be a lamellák közé, mind az enyhén savas (pH = 4), mind az erősen savas (pH = 1) szollal készített kompozit sorozat esetén.

A mintákon végzett nitrogén adszorpciós mérések bizonyították, hogy a kompozit minták pórusos jellegűek és fajlagos felületük 120-290 m^2/g között változhat. A meghatározott izotermák kivétel nélkül, a pórusos adszorbensekre jellemző, kapilláris kondenzációt mutató típust szolgáltatták. Megállapítottam, hogy a kompozitokban a növekvő titán-dioxid tartalommal egyre több és azonos méretű pórus alakul ki. Kimutattam, hogy az erősen savas (pH = 1) heterokoagulációs közeg a rétegszilikát hordozó kémiai összetételét, kristályosságát és fizikai szerkezetét is megváltoztatja, amely nagyobb fajlagos felületű és nagyobb mértékben mikropórusos szerkezetű nanokompozit minták előállítását tette lehetővé.

3. A nanokompozitok szerkezete és az optikai tulajdonságok közötti kapcsolat

A kisebb titán-dioxid tartalmú (20, 33, 50 %) minták esetében a pH = 4-es TiO_2 szollal készített kompozitok esetén az UV-Vis abszorpciós spektrumok alapján meghatározott gerjesztési küszöbértékek (E_g) nagyobbak, mint a pH = 1-es szollal készített mintáké. Feltételezésem szerint a félvezető részecskéket a negatív töltésfelesleget hordozó rétegszilikát lamellák közé beépítve a lamellák elektromos erőterében a primer TiO_2 részecskék vegyérték sávja és a vezetési sávja perturbálódik, melynek következtében a gerjesztés során kialakult elektron-lyuk pár (exciton) rekombinációja gátolt lesz. A montmorillonit *TOT* szerkezetű lamelláit tekintve a töltésért felelős réteg a két tetraéderes sík (*T*) között elhelyezkedő oktaéderes szimmetriájú (*O*) alumínium(III) tartalmú réteg, amely az erősen savas (pH = 1) közegben jól oldódik. A lamellák kémiai összetétele ezért megváltozik és a rács kristályossága csökken, ezért a fentiekben említett hatás nem jelentkezik, vagyis a TiO_2 /MA sorozat kisebb félvezető tartalmú tagjai könnyebben gerjeszthetők (λ_g = 367-376 nm). A nagyobb félvezető tartalmaknál (66 és 75 %) a hordozó λ_g-t csökkentő hatása háttérbe szorul és ezen két kompozitban az ún. méretkvantálási effektus válik meghatározóvá. Ezért a részecskeméret növelésével a gerjesztési energia (E_g) csökken, vagyis az interkalált TiO_2 nanorészecskék mérete fogja befolyásolni E_g nagyságát. Mivel a TiO_2 /MA sorozatnál kisebb részecske méretet (d = 2,5 nm) határoztam meg, mint a TiO_2 /M sorozat tagjai esetében (d = 2,6 nm), így a meghatározott gerjesztési energia az erősen savas körülmények között készített mintáknál nagyobb lesz.

4. Diklór-ecetsav (DCA) bontása a TiO_2/montmorillonit kompozitokon

Megállapítottam, hogy a diklór-ecetsav fotooxidációja során a 60 perc megvilágítási idő elteltével termelődött proton mennyisége 1g katalizátor tömegére vonatkoztatva a kompozitok titán-dioxid tartalmának növekedésével

- az irodalmi eredményekkel összhangban - növekszik. A kompozitok tiszta titán-dioxid tartalmára vonatkoztatott protontermelés azonban, a tiszta hordozó nélküli TiO_2 minta esetén alacsonyabb, mint a TiO_2 75/M és a TiO_2 66/M mintára vonatkozó adat. A TiO_2 20/M és TiO_2 33/M pedig alacsonyabb fotokatalitikus hatékonyságot szolgáltat az előbb említett mintákhoz képest. A TiO_2 /M sorozat tagjaihoz képest minden esetben nagyobb fajlagos felülettel rendelkező TiO_2 /MA sorozat tagjai esetében elért fotooxidációs hatékonyság pedig minden esetben alacsonyabb. Ez azt bizonyítja, hogy az eredeti montmorillonit hordozó nem, mint adszorbens játszik szerepet a folyamatban, sokkal inkább a részecskékben a gerjesztés hatására bekövetkező töltésszétválás rekombinációját fékező szerepe van, ugyanis a negatív töltésű rétegszilikát lamellák felületén az anionos DCA^- speciesek adszorpcióját az analitikai pontosság határain belül nem tudtam kimutatni.

5.a A diklór-ecetsav adszorpciója és az elektrolit hatás befolyása a fotokatalízisre

A diklór-ecetsav fotokatalitikus lebontásában a szol-gél TiO_2 mintát felhasználva, a növekvő inert elektrolit (KNO_3) koncentráció csökkenti a katalitikus hatékonyságot. Ennek oka, hogy a DCA^--anionok és a NO_3^--ionok között kompetíció alakul ki a felületen lévő adszorpciós helyekért. Bizonyítottam, hogy a KNO_3 elektrolitnak a diszpergált TiO_2 részecskék kolloid stabilitását szabályzó hatása és az ionerősség szorpciót befolyásoló szerepe érvényesül a fotodegradáció során.

5.b A szuszpenzió töménység hatása a fotokatalitikus hatékonyságra

A fotokatalitikus hatékonyságot csökkentő fényszórási effektus kimutatására független kísérletekben, különböző szuszpenzió töménységek alkalmazása mellett végeztem el a fotooxidációs lebontási kísérleteket. Vizsgáltam, hogy melyik koncentráció érték esetén érhető el maximális fotokatalitikus hatékonyság úgy, hogy a fényszórásból származó katalitikus hatékonyság csökkenés még nem számottevő. Méréseim szerint a szuszpenziók turbiditása és transzmittanciája együttesen felelős a fotokatalitikus hatékonyság változásáért. A kisebb szuszpenzió töménységek tartományában (0,005-0,047 g/100 cm^3) a kisebb turbiditás értékek és ezzel párhuzamosan nagyobb mértékű fényáteresztő tulajdonságok esetén a titán-dioxid szuszpenzió koncentrációját emelve nő a katalitikus hatékonyság. A nagyobb töménységű (0,057 és 0,072 g/100 cm^3) szuszpenziók esetében a turbiditás jelentősen növekszik és ezzel együtt a fényáteresztő képesség jelentősen csökken. Így a gerjesztést kiváltó fotonok hasznosulása igen kicsiny, amit a katalitikus hatékonyságban jelentkező csökkenés igazol.

6. A hordozó hatása a fotokatalitikus hatékonyságra

Megállapítottam, a TiO_2 /M sorozat esetében kisebb titán-dioxid tartalmaknál a hordozó kedvezőtlen hatása, míg nagyobb titán-dioxid tartalmaknál a pozitív, szinergikus hatása érvényesül. Az eredményeket a tiszta Na-montmorillonit hordozó és a TiO_2 minta fotodegradációs tulajdonságainak ismeretében a kompozitokra vonatkozóan egyszerű súlyozással adtam meg. A 20 és 33 % TiO_2 tartalomnál a számított értékekhez viszonyított alacsonyabb fotokatalitikus hatékonyság a hordozó lamellái által bekövetkező árnyékolási hatásnak és a nagyobb E_g-knek tulajdonítható. A nagyobb titán-dioxid tartalmak esetében a montmorillonit relatív mennyiségének csökkenése miatt az árnyékoló hatás csökken, és a méretkvantálási, ill. a lamellák rekombinációt fékező hatása érvényesül. Megállapítható az is, hogy a TiO_2 50/M kompozit esetén e két hatás, mintegy kiegyenlíti egymást és így a tiszta TiO_2-ra vonatkozó DCA bontás eredményt kaptam. A TiO_2 /MA sorozat előállításakor a hordozó szerkezete amorffá válik és a kristályossági fok csökkenésével annak ioncsere kapacitása és így töltéssűrűsége is csökken, melynek következtében nem tudja kifejteni a töltésszétválást követő rekombinációt fékező tulajdonságát. Megállapítható tehát, hogy az amorf szerkezetű hordozó nincs jelentős befolyással a TiO_2 fotokatalizátor működésére, vagyis lényeges perturbáló hatást nem fejt ki. A hordozó árnyékolási hatásával továbbra is számolni kell, ezért a TiO_2 /MA sorozat minden TiO_2/rétegszilikát összetételnél gyengébb katalitikus hatékonyságot produkált, mint a TiO_2 /M sorozat tagjai.

II. Az ultravékony filmekre vonatkozó eredmények

7. Önszerveződő, nanostruktúrált filmek készítése és szerkezetük

Az állandó (3:1 ZnAl réteges kettős hidroxid) és változó (TiO_2, SiO_2) felületi töltéssel rendelkező nanorészecskékből bemerítéses, önrendeződő technikával létrehozott ultravékony rétegek felépülését röntgendiffrakciós, UV-Vis spektrofotometriás és atomi erő mikroszkópiás (AFM) módszerekkel követve megállapítottam, hogy a bemerítési ciklusszám növekedésével arányos mennyiségű anyag halmozódik fel a hordozó (mikroszkóplemez) felületén az elektrosztatikus vonzások miatt. A réteges kettős hidroxidokból felépülő filmek esetén bizonyítékot találtam arra, hogy a filmet felépítő részecskék szigetszerűen rakódnak le a felületre és az egyes bemerítések során mind a felület borítottsága, mind a megtapadt réteg vastagsága növekszik. Indirekt (UV-Vis) és direkt (AFM) módszerrel meghatároztam a filmeken levő anyag felületi koncentrációját, valamint a rétegek vastagságát és megállapítottam, hogy a két módszer 100 % borítottság esetén jó egyezést mutat. A TiO_2, ill. a TiO_2/SiO_2 filmek esetében hasonló megállapításokat tettem, de ezen filmeknél csak indirekt módon, spektrofotometriásan határoztam meg a felületi koncentráció, ill. rétegvastagság adatokat.

8. TiO_2-ot tartalmazó filmekkel végrehajtott fotokatalitikus lebontások

a) TiO_2 rétegek és szuszpenziók alkalmazásával kapott fotokatalitikus eredmények

A csak titán-dioxidot tartalmazó ultravékony rétegekkel (d = 20-80 nm) elvégzett fotokatalitikus lebontási kísérletek megmutatták, hogy a filmek hatékonyan alkalmazhatók szerves színezék fotooxidációs lebontásában. Az üveglemez felületén elektrosztatikus erőkkel rögzített rétegek (részecskék) mennyiségének növelésével növekszik a katalitikus hatékonyság. Három, azonos körülmények között, tíz bemerítési ciklussal készített katalizátor film tömegmérési adatai alapján az adott mennyiségű katalizátor anyagot vizes közegben szuszpendálva fotokatalitikus lebontási kísérletet végeztem és megállapítottam, hogy az azonos mennyiségű TiO_2 vékonyrétegben való rögzítése esetén nagyobb (15-20 %-kal) fotokatalitikus hatékonyságot lehet elérni, mintha ugyanez a mennyiség szuszpendált formában lenne jelen a reaktorban. Ennek oka az, hogy a szuszpenziós, fotokatalitikus rendszerben a nagy hígítás miatt (0,0054 mg/cm^3) kicsi a TiO_2 részecskék által elnyelt fotonok mennyisége összevetve (pl. a 10 bemerítési ciklussal készített filmek esetén) a filmrétegen 0,0222 mg/cm^2 felületi koncentrációban megkötött TiO_2 elnyelésével. A filmrétegben a részecskék összetapadva, összefüggő filmréteget hoznak létre, amelyben a kísérleti eredmények szerint nagyobb a reaktortérbe bejutó fény hasznosulása, ezáltal a színezék fotokatalitikus bonthatósága.

b) A TiO_2/SiO_2 kombinált rétegek alkalmazásával kapott fotokatalitikus eredmények

A titán-dioxidra, mint fotokatalitikusan aktív komponensre nézve azonos bemerítési ciklusszámmal készített, kizárólag titán-dioxidot tartalmazó és a titán-dioxid/szilícium-dioxid vegyes rétegeket alkalmazó ultravékony filmek azonos katalitikus aktivitást mutattak. A **szilika szol** kötőanyag alkalmazásával UV ellenálló filmeket lehet előállítani, mivel a kötőanyag nem szenved fotodegradációt a megvilágítások során. A szilika nanorészecskék nem változtatják meg lényegesen a filmek optikai tulajdonságait, viszont a modellvegyület adszorpcióját elektrosztatikus okok miatt elősegítik, mivel a lebontások során alkalmazott közeg kémhatása miatt a szilícium-dioxid részecskék felülete negatívan töltött és azokon a pozitív töltésű színezék molekulák adszorpciója kedvezményezett.

9. A 3:1 ZnAl réteges kettős hidroxid filmek fotokatalitikus vizsgálatának eredménye

Munkám során célul tűztem ki olyan ZnAl réteges kettős hidroxid minta előállítását, amely fotokatalitikus aktivitást mutat a benne lévő cink-oxid fázis jelenléte miatt. A mintákból készített szuszpenziókban végrehajtott gerjesztési küszöbenergia meghatározások szerint a λ_g = 405 nm hullámhosszúságú fény alkalmas a minta részecskéinek gerjesztéséhez. A 3:1 Zn:Al mól aránnyal jellemezhető réteges kettős hidroxid mintából és a referencia Degussa P25 titán-dioxidból készített ultravékony rétegek fotokatalitikus hatékonyságát narancs-akridin szerves színezék fotodegradálásával teszteltem. Megállapítottam, hogy a réteges kettős hidroxidok három óra megvilágítási idő után meghatározott katalitikus hatékonysága magasabb volt, mint a Degussa P25 TiO_2 tartalmú ultavékony rétegek esetében meghatározott érték.

Az eredmények lehetséges gyakorlati alkalmazása

10. A filmek regenerálhatósága és újra hasznosíthatósága

A Degussa P25 titán-dioxidból bemerítéses, önrendeződő technikával készített ultravékony rétegek regenerálhatóságát és újra hasznosíthatóságát vizsgáltam. A kísérletek azt mutatták, hogy a titán-dioxid tartalmú katalizátor filmek hatékonyan és egyszerűen regenerálhatók, mivel a többszöri újrahasznosítás során a filmek nem mutattak jelentős fotokatalitikus aktivitás csökkenést. Ez tovább növeli a filmkatalizátorok alkalmazásának fontosságát, mivel magasabb fotokatalitikus hatékonyságot tudtam elérni ugyanazon mennyiségű anyag hordozó felületén való megkötésével. Továbbá, a filmek újrahasznosíthatók és a reakció edényből egyszerűen eltávolíthatók, míg a szuszpenziókból meglehetősen nehéz, ill. ipari méretekben igen költséges a katalizátor anyagokat eredeti formájukban visszanyerni.

Tudományos közlemények

Az értekezés témájában megjelent tudományos dolgozatok

1. L. Kőrösi, K. Mogyorósi, **R. Kun**, J. Németh, I. Dékány
Preparation and photooxidation properties of metal oxide semiconductors incorporated in layer silicates
Progress in Colloid and Polymer Science, 125 (2004) 27-33
IF_{2004}: 1,110

2. **R. Kun**, K. Mogyorósi, J. Németh, L. Kőrösi, Sz. Papp, I. Dékány
Thermoanalytical and structural properties of metal oxide semiconductor and palladium/layer silicate nanocomposites
Journal of Thermal Analysis and Calorimetry, 79 (2005) 595-604
IF_{2004}: 1,478

3. **R. Kun**, M. Balázs, I. Dékány
Photooxidation of organic dye molecules on TiO_2 and Zinc-Aluminum layered double hydroxide ultrathin multilayers
Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects, 265 (2005) 155-162
IF_{2004}: 1,513

4. Á. Patzkó, **R. Kun**, V. Hornok, I. Dékány, T. Engelhardt, N. Schall
ZnAl-layer double hydroxides as photocatalysts for oxidation of phenol in aqueous solution
Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects, 265 (2005) 64-72
IF_{2004}: 1,513

5. **R. Kun**, K. Mogyorósi, I. Dékány
Synthesis and structural and photocatalytical properties of TiO_2/montmorillonite nanopcomposites
Applied Clay Science, 32 (2006) 99-110
IF_{2004}: 1,267

ΣIF: 6,881

Az értekezés témájához nem kapcsolódó tudományos dolgozat

6. **R. Kun**, J. H. Fendler
Use of attenuated total internal reflection-Fourier transform infrared spectroscopy to investigate the adsorption of and interactions between charged latex particles
Journal of Physical Chemistry B, 108 (2004) 3462-3468
IF_{2004}: 3,834

összesített hatástényező: 10,715

Szabadalmi bejelentés

Dékány Imre, Patzkó Ágnes, **Kun Róbert**
Eljárás cink-hidroxid/cink-alumínium kettős hidroxid interkalált nanokompozitok előállítására és alkalmazásuk környezetre káros szerves anyagok fotooxidációs lebontására
Magyar Szabadalom, bejelentés ideje: 2005. október

Konferenciaszereplések (előadások, poszterek):

1. Á. Patzkó, **R. Kun**, K. Mogyorósi, É. Bazsó, I. Dékány
Zn-Al Layer Double Hydroxides for Photooxidation of Phenol in Aqueous Solutions
The Third Int. Conf. „Interfaces Agains Pollution" (IAP 3) Jülich, Németország, 2004. május 24-27., Előadás összefoglaló: C1. old.

2. Á. Patzkó, **R. Kun**, K. Mogyorósi, É. Bazsó, I. Dékány
Zn-Al-Layer Double Hydroxides for Photooxidation of Organic Molecules in Aqueous Suspensions
3rd European Meeting on Solar Chemistry and Photocatalysis, Barcelona, Spanyolország, 2004. június 30. - július 2., Előadás összefoglaló: 5.P.14./225. old.

3. **R. Kun,** M. Balázs, I. Dékány
Photocatalytic degradation of organic compounds using TiO_2 and layer double hydroxides ultrathin films and suspensions
9th International Symposium on Particle Size Analysis, Environmental Protection and Powder Technology, PORANAL, Balatonfüred, 2004. szeptember 5-7., (poszter) Előadás összefoglaló: 77. old.

4. I. Dékány, L. Kőrösi, **R. Kun**, T. Szabó, R. Patakfalvi, Sz.Papp
Nanoparticle stabilization in layer structured materials
9th International Symposium on Particle Size Analysis, Environmental Protection and Powder Technology, PORANAL, Balatonfüred, 2004. szeptember 5-7., (poszter) Előadás összefoglaló: 33. old.

5. Á. Patzkó, **R. Kun**, L. Kőrösi, I. Dékány, Á. Molnár, L. Nagy
Reactive nanoparticles for mineralization of hazardous organic material using solar energy
3rd Int. Symposium on NBC-Decontamination Munster, Lower Saxony, Németország, 2004. szeptember 28-30., Előadás összefoglaló: CD 4014 46MD 131451

6. **R. Kun**, M. Balázs, I. Dékány
Preparation of multilayered nanofilms for photocatalytical applications
2nd Szeged International Workshop on Advances in Nanoscience, Szeged, 2004. szeptember 30. - október 2., (előadás) Előadás összefoglaló: 21. old.

7. I. Dékány, L. Kőrösi, **R. Kun**, T. Szabó, Sz.Papp
Structural and photocatalytical properties of semiconductor and noble metal/layered material nanocomposites and ultrathin films
Proc. of the 2nd Int. COE Symposium for Giant Molecules and Complex Systems, Sendai, Japán, 2004. november 22-23., Előadás összefoglaló: 13. old.

8. **R. Kun**, I. Dékány
Photocatalytical application of TiO_2/SiO_2 and Zinc-Aluminum layer double hydroxide multilayered nanofilms prepared by LBL immersion method
8th International Symposium on Interdisciplinary Regional Research, Szeged, 2005 április 19-21., (poszter)

9. **R. Kun**, I. Dékány
Characterization and photocatalytical application of TiO_2 and zinc-aluminum Layer Double Hydroxide multilayered films prepared by LBL immersion method
E-MRS European Materials Research Society 2005 Spring Meeting, Strasbourg, Franciaország, 2005. május 31. - június 3., (poszter)

10.I. Dékány, L. Kőrösi, **R. Kun**, T. Szabó, J. Ménesi, Sz. Papp
Structural and photocatalytical properties of self-assembled ultrathin films prepared from inorganic/organic colloids
E-MRS European Materials Research Society 2005 Spring Meeting, Strasbourg, Franciaország, 2005. május 31. - június 3., (előadás)

11.**R. Kun**, I. Dékány
Preparation and characterization of TiO_2 and Zn-Al layered double hydroxide containing multilayered photoactive multilayered films
First International Workshop on Semiconductor Nanocrystals, SEMINANO 2005, Budapest, 2005. szeptember 10-12., (poszter)