

П.М. Милян¹, Г.В. Кун², Ж.І. Милян¹, Д.І. Молнар³

Одержання та ідентифікація сполуки Pb_3TeO_6

¹НДІ фізики і хімії твердого тіла ДВНЗ “Ужгородський національний університет”, 88000, Ужгород, вул. Підгірна, 46, тел.: (03122) 3-41-57, e-mail: pet-milyan@yandex.ua;

²ДВНЗ “Ужгородський національний університет”, 88000, Ужгород, вул. Підгірна, 46,

³Мукачівський державний університет, 89600, Мукачево, вул. Ужгородська, 26

В даній роботі проведений фізико-хімічний аналіз процесу взаємодії оксидів $PbO:TeO_2=3:1$. Твердофазним синтезом одержано тернарну сполуку Pb_3TeO_6 . Методами РФА та хімічним аналізом проведена її ідентифікація.

Ключові слова: оксиди, тернарна сполука, аналіз.

Стаття поступила до редакції 25.07.2015; прийнята до друку 15.09.2015.

Вступ

Науковою основою одержання складних оксидних матеріалів є результати, які отримані при вивченні характеру фізико-хімічної взаємодії у складних системах. Важливо відзначити, що результати досліджень різних авторів в окремих випадках досить суперечливі. Це пов'язано із залежністю властивостей оксидних керамічних матеріалів від умов їх одержання (вихідні речовини, методи синтезу), їх дисперсного стану та впливу середовища.

Сполуки, що утворюються в системі $Pb-Te-O$, давно викликають інтерес з наукової та практичної точки зору. Наявність у складі телуритів і телуратів плумбуму високополяризованих іонів Pb^{2+} , Te^{4+} і Te^{6+} дає можливість виявити серед них нові сегнетоелектричні матеріали. Тому розробка методів синтезу керамічних матеріалів, дослідження їх фізико-хімічних та фізичних властивостей є актуальною.

Система $Pb-Te-O$ досліджувалась багатьма авторами [1-13]. В основному, це стосується вивчення фізико-хімічної взаємодії на розрізах $PbO-TeO_2$ [3, 8-13], $PbTeO_4-PbO$ [2, 6, 8], $PbTeO_3-PbO$, $PbTe-PbTeO_3$ [2].

Аналіз літературних даних показує, що в цих системах утворюється цілий ряд проміжкових фаз, деякі з них є перспективними сегнето- і п'єзоелектричними матеріалами [4-8, 10].

На основі результатів дослідження [11, 12] та науковців [13] в інтервалі концентрацій 50-100 мол. % PbO розміщення ліній солідуса-ліквідуса була відкоректована діаграма стану системи $PbO-TeO_2$ (рис.1.).

Окрім цього, автори [3] вказують на відсутність сполуки з молярним співвідношенням $PbO:TeO_2=1:1$, а в [5] - встановлено існування двох модифікацій $PbTeO_3$ (моноклінної α і тетрагональної β), приведені умови їх одержання та деякі кристалохімічні характеристики.

Одержані невеликі монокристали сполук в системі $Pb-Te-O$ (α - $PbTeO_3$, β - $PbTeO_3$, Pb_3TeO_6 , $Pb_2Te_3O_8$ та ін.), досліджені їх рентгенографічні, діелектричні, калориметричні і електрофізичні властивості [8].

Встановлено, що сполуки β - $PbTeO_3$, Pb_3TeO_6 є сегнетоелектриками з $T_c=530$ К і 490 К, а Pb_3TeO_5 – піроелектриком до ~ 800 К [8].

В той же час, в літературі майже відсутні відомості (результати суперечливі) про одержання керамічних матеріалів складних оксидів на основі Pb і Te .

Метою даної роботи є одержання сполуки Pb_3TeO_6 твердофазним синтезом та її ідентифікація методами рентгенівського фазового (РФА) та хімічного аналізів.

І. Експериментальна частина

Вихідні бінарні оксиди PbO та TeO_2 (марка х.ч.) завантажували в алундовий тигель та нагрівали. Синтез проводили в атмосфері кисню повітря.

Рентгенівський фазовий аналіз проводили на рентгенівському дифрактометрі ДРОН-3 в $Cu K\alpha$ -випроміненні з використанням нікелевого фільтру методом порошку [14]. Реєструючим пристроєм був лічильник СРР-4. В якості вимірювально-реєструючої частини використовували

Результати хімічного аналізу сполуки Pb₃TeO₆

Вихідний стехіометричний склад	Pb, ваг. %		Te, ваг. %		O, ваг. %		Знайдена формула
	теор.	експ.	теор.	експ.	теор.	експ.	
Pb ₃ TeO ₆	73,54	73,47	15,10	15,03	11,36	11,50	Pb _{2,98} Te _{0,99} O _{6,04}

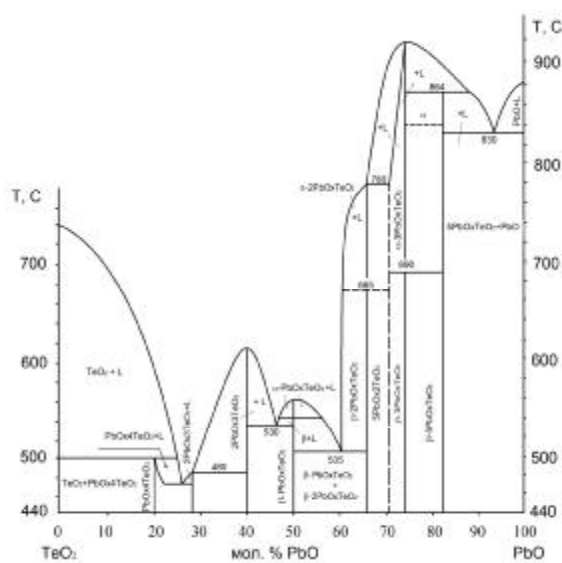


Рис. 1. Фазова діаграма системи PbO-TeO₂.

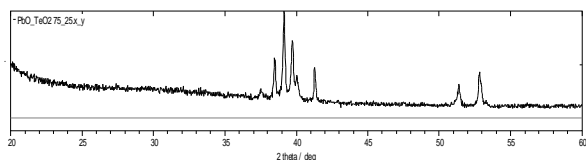


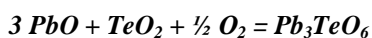
Рис. 2. Дифрактограма сплаву складу 75 мол. % PbO – 25 мол. % TeO₂.

напівпровідникові електронно-обчислювальні пристрої ПР-ММ та самописець КСП-4.

Для встановлення точного складу досліджуваних речовин був проведений кількісний хімічний аналіз на такі елементи як Плюмбум, Телур та Оксиген [15-17].

II. Результати та їх обговорення

Синтез проводили методом твердофазної реакції. Хімізм процесу можна представити рівнянням реакції



В якості вихідних речовин використовували PbO і TeO₂ марки (х.ч). Наважка становила 5 г.

Суміш нагрівали безпосередньо на повітрі і витримували протягом 12 годин при максимальній температурі, після чого вели повільне охолодження в режимі виключеної печі. Температура синтезу

склала 1000 К.

Продукт синтезу представляв собою порошок білого кольору з жовто-помаранчевим відтінком, стійкий на повітрі.

Дослідження тернарної сполуки Pb₃TeO₆ було проведено методами рентгенівського фазового (РФА) та хімічного аналізів.

Результати рентгенофазового аналізу для сплаву складу 75 мол. % PbO – 25 мол. % TeO₂ представлені на рис.2.

Як видно із рис.2 для цього сплаву (PbO:TeO₂=3:1) характерні серії рентгенівських рефлексів, які відповідають проміжковій фазі Pb₃TeO₆.

Для встановлення точного складу досліджуваних речовин кількісний хімічний аналіз на такі елементи як Оксиген та Телур проводили титриметричними методами. Що стосується Плюмбуму, то його визначення проводили методом атомно-абсорбційної спектроскопії. Похибка результатів титриметричних методів складає 0,1-0,3 %, атомно-абсорбційного – до 3 %.

В процесі хімічного аналізу сплавів в цій системі отримали результати, які представлені в табл.

Як видно із цієї табл., спостерігаються невеликі відхилення від стехіометрії одержаної сполуки. Ці незначні розбіжності можна пояснити сублимацією частини PbO при синтезі, а також взаємодією вихідних речовин з контейнером.

Ідентифікована сполука при кімнатній температурі практично не гідролізується водою, не розчиняється в ацетатній і нітратній кислотах, а також в органічних розчинниках: етиловому спирті, бензені, толуені, тетрахлориді вуглецю.

Милян П.М. – кандидат хімічних наук, старший науковий співробітник, завідувач науково-дослідною лабораторією НДІ фізики і хімії твердого тіла ДВНЗ “Ужгородський національний університет”;

Кун Г.В. – кандидат хімічних наук, доцент кафедри неорганічної хімії хімічного факультету ДВНЗ “Ужгородський національний університет”;

Милян Ж.І. – молодший науковий співробітник НДІ фізики і хімії твердого тіла ДВНЗ “Ужгородський національний університет”;

Молнар Д.І. – кандидат хімічних наук, доцент кафедри готельно-ресторанної справи Мукачівського державного університету.

- [1] R.N. Knjazeva, T.A. Larionova, I.A. Shevchenko, ZhNH. 22(8), 2061 (1977).
- [2] O.I. Tananayeva, Z.K. Latypova, A.V. Novoselova, Inorganic materials. 13(2), 324 (1977).
- [3] I.M. Young, Mater. Science. 14(7), 1579 (1979).
- [4] L.I. Kosse, E.D. Politova, V.V. Chechkin i dr., Izv. AN SSSR. Neorgan. mater. 18(11), 1879 (1982).
- [5] L.I. Kosse, E.D. Politova, A.A. Bush i dr., Kristallografija. 28(3), 510 (1983).
- [6] L.I. Kosse, E.D. Politova, A.A. Bush i dr., Kristallografija. 28(3), 514 (1983).
- [7] L.I. Kosse, E.D. Politova, A.A. Bush i dr., ZhNH. 28(7), 1689 (1983).
- [8] L.I. Kosse, E.D. Politova, A.V. Astaf'ev i dr., Fizika tverdogo tela. 25(7), 2029 (1983).
- [9] Ph. Sciau, J. Lapasset, J. Moret, Acta Cryst. C42, 1688 (1986).
- [10] M. Vithal, P. Nachimuthu, T. Banu, R. Jagannathan, Appl. Phys. 81(12), 7922 (1997).
- [11] D.S. Robertson, N. Shaw, I.M. Young, Phys. D: Appl. Phys. 9(8) 1257 (1976).
- [12] I.M. Young, Mater. Sci. 14(7) 1579 (1979).
- [13] D. Stavrakieva, Y. Ivanova, J. Pyrov, Mater. Science. 23(5), 1871 (1988).
- [14] L.M. Kovba. Rentgenografija v neorganicheskoj himii (Izd-vo MGU, Moskva, 1991).
- [15] N.G. Poljanskij. Svinec (Nauka, Moskva, 1986).
- [16] R. Bok. Metody razlozhenija v analiticheskoj himii (Himija, Moskva, 1984).
- [17] A.I. Busev, V.G. Tipcova, V.M. Ivanov. Rukovodstvo po analiticheskoj himii redkih jelementov (Himija, Moskva, 1978).

P.M. Milyan¹, G.V. Kun², Zh.I. Milyan¹, J.I. Molnar³

Synthesis and Identification of Pb₃TeO₆ Compound

¹Research Institute for Physics and Chemistry of Solids, Uzhgorod National University, Pidgirna, 46, 88000, Uzhgorod, Ukraine; tel.: (03122) 3-41-57, e-mail: pet-milyan@yandex.ua;
²Uzhgorod National University, Department of Chemistry, Narodna, 3, 88000, Uzhgorod, Ukraine;
³Mukachevo State University, Uzhgorodska, 26, 89600, Mukachevo, Ukraine

In present work, the physico-chemical analysis of the interaction process for PbO:TeO₂=3:1 has been carried out. The ternary compound Pb₃TeO₆ was obtained by solid-phase reaction; this compound was identified by X-ray diffraction and chemical analysis.

Keywords: oxides, ternary compound, analysis.