АННОТАЦИЯ

диссертации на соискание степени доктора филлософии (PhD) по специальности «6D074000 – Наноматериалы и нанотехнологии»

НҰРҒАИН АРАЙЛЫМ

«Разработка наноструктурированных сорбентов на основе диатомита для очистки воды»

Общая характеристика работы. Диссертационная работа посвящена исследованию адсорбционных свойств природного диатомита Мугалжарского месторождения и разработка на его основе наноструктурированных сорбентов для очистки водных растворов от тяжелых металлов и органических красителей.

Экспериментально установлено что немодифицированный диатомит эффективно удаляет ионы Pb^{2+}, при этом процесс адсорбции носит самопроизвольный и эндотермический характер, описывается кинетической моделью псевдовторого порядка и изотермами Ленгмюра и Фрейндлиха.

Показано, что природный диатомит обладет развитой пористой сруктурой, высокой химической и термической стабильностью, что делает его перспективной матрицей для создания функциональных сорбционных материалов. Модификация диатомита гидрофильными углеродными наночастицами (2-5мас.%) приводит к увеличению удельной поверхности, обьема пор и количества активных центров без рузрушения структуры.

Установлено, что адсорбция метиленового синего протекает преимущественно по механизму хемосорбции и описывается моделью Эловича и изотермой Фрейндлиха.

Модификация диатомита железосодержащими соединениями позволила получить магнитные нанокомпозиты с размером частиц около 30-38 нм и намагниченностью насыщение до 10,9 эму/г, обеспечивающие быстрое магнитное разделение (менее 22 сек).

Актуальность темы исследования. Загрязнение водных ресурсов тяжелыми металлами и органическими соединениями продолжает оставться серьезной экологической проблемой. Рост промышленного производства, развитие горнодобывающего комплекса, металлургии и химической отрасли сопровождаются увеличением обьемов выбросов токсичных веществ в окружающую среду. Среди них, особую опасность представляют тяжелые металлы, включая свинец, которые отличаются высокой устойчивостью, токсичностью и способностью накапливаться в живых организмах. Усиление антропогенной нагрузки на водные экосистемы определяетнеобходимость поиска новых решений в области водоочистки.

В этой связи одной из приоритетных задач является разработка эффективных сорбционных материалов, обеспечивающих удаление опасных загрязнителей при минимальных затратах и с соблюдением экологических требований.

Дополнительную значимость исследованию придает вопрос рационального использования природных ресурсов Республики Казахстан располагает значительными запасами диатомита, которые в настоящее время используются ограниченно. При этом в мировой практике данный материал активно применяется в технологиях фильтрации, водоочистки, а также в химической и строительной промышленности. Вовлечение таких ресурсов в хозяйственный оборот не только расширяет сырьевую базу, но и способствует решению актуальных экологических задач.

Таким образом, разработка наноструктурированных сорбентов с использованием, казахстанского диатомита является значимой научно-практической задачей. Ее актуальность обусловлена необходимостью получения эффективных и экономически доступных материалов, обеспечивающих очистку воды и снижение экологических рисков, связанных с загрязнением водных ресурсов.

Цель работы – разработка наноструктурированных сорбентов на основе Мугалжарского диатомита с адсорбционными свойствами обеспечивающие эффективную очистку воды от загрязняющих веществ.

Задачи работы. Для достижения цели в диссертационной работе были поставлены следующие задачи:

1. Определить сорбционные свойства мугалжарского диатомита по отношению к ионам тяжелых металлов, в частности ионам свинца, на осове анализа структурных, текстурных и физико-химических характеристик материала.
2. Получить гибридные материалы на основе диатомита и гидрофильных углеродных наночастиц и выявить влияние данной модификации на свойства материала.
3. Определить адсорбционные характеристики полученных гибридных материалов по отношению к катионным органическим красителям (кинетика и изотермы адсорбции, максимальная адсорбционная емкость).
4. Установить влияние модификации природного диатомита Мугалжарского месторождения с использованием сульфата железа и определить оптимальное соотношение для получения магнитных композитных сорбентов.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Установленная зависимоть адсорбционной емкости Pb^{2+} (61,5-74,9 мг/г) природного Мугалжарского диатомита от температуры в диапазоне 25-45 ºС демонстрирует перспективность его использования в процессах адсорбционного удаления ионов свинца из водных растворов.
2. Метод структурной активации природного диатомита использованием гидрофильных углеродных наночастиц (5 мас.%) с размерами частиц около 15-20 нм обеспечивает направленное изменение текстурных характеристик увеличение удельной поверхности с 38 да 50 $м^2/г$ и общего обьема пор до 0,148$см^3/г$ при сохранении целостности сруктуры минеральной матрицы.

3. Гибридный сорбент на основе диатомита и гидрофильных углеродных наночастиц (5 мас.%) обладает адсорбционной емкостью по метиленовому синему до 464,9 мг/г (чистый диатомит – 457,2 мг/г); сорбент стабилен в широком диапазоне pH 2–9, что подтверждается результатами ζ-потенциала.

4. Разработан метод получения композитного магнитного сорбента на основе природного диатомита Мугалжарского месторождения с использованием сульфата железа (II) с формированием наночастиц магнетита (Fe_3O_4) размером около 30-38 нм; полученный материал характеризуется удельной поверхностью 55 $м^2$/г и намагниченностью 10,9 эму/г.

Обьект исследования – казахстанский диатомит, добытый в Мугалжарском районе Актюбинской области, а также нанокомпозиты, полученные на его основе (магнитные и гибридные нанокомпозиты).

Предмет исследования – процессы модификации диатомита, формирование нанокомпозитов на его основе и их структурные и адсорбционные свойства.

Методы исследования

Для достижения цели и решения поставленных задачиспользовались следующие методы исследования: термогравиметрический анализ (ТГА), сканирующая электронная микроскопия (СЭМ), просвечивающая электронная микроскопия (ПЭМ), оптическая микроскопия, анализ Брунауэра-Эммела-Теддера (БЭТ), энергодисперсионный рентгеновский анализ (ЭДС), Рамановская спетроскопия (спетроскопия комбинационногорассеяния), инфракрасня спетроскопия (ИК), рентгеннофазовый анализ (РФА), ультрафиолетовая-видимая спектроскопия (УФ-вид), атомно-абсорбционная спектроскопия (ААС), определение гранулометрическог состава и размеров частиц (по лазерной гранулометрии), измерение ζ-потенциала, элементный анализ:(CNH-анализ), SQUID-сверхпроводящая квантовая интерференционная магнитометрия, метод механохимической обработки и ультразвуковой обработки.

Научная новизна работы

Вработе были впервые получены следующие результаты:

1. Впервые определены сорбционные свойства немодифицированного диатомита Мугалжарского месторождения, при этом максимальная адсорбционная емкость по отношению к Pb^{2+} составляет 74,9 мг/г, что свидетельствует о высокой эффективности материала для очистки водных растворов от свинца.

2. Впервые получены гибридные материалы на основе диатомита и гидрофильных углеродных наночастиц (5 мас.%), при этом установлено, что их модификация приводит к синергетическому эффекту: увеличивается удельная поверхность на 12 $м^2$/г и общий поровои обьем, что свидетельствует о структурной активации минеральной матрицы диатомита.

3. Адсорбционные характеристики полученных гибридных материалов подтверждают хемосорбционный механизм адсорбции метиленового синего на казахстанском диатомите и его гибридных формах,

что соответствует с кинетической моделью Эловича (R^2=0,9848), близостью расчетных и экспериментальных значений.

4. Установлено, что модификация природного диатомита Мугалжарского месторождения методом осаждения с последующим термическим разложением сульфата железа при оптимальном соотношении диатомита к железе 1:1,7 приводит к формированию наночастиц магнетита и увеличению удельной поверхности на 15 $м^2$/г.

Теоритическая значимость.

Полученные в работе результаты расширяют фундаментальные представления о физико-химических закономерностях модификации природных кремнеземсодержащих минералов углеродными и магнитными наночастицами. Установлены взаимосвязи между структурно-текстурными характеристиками диатомита (удельной поверхностью, обемом пор, распределением пор по размерам), поверхностным зарядом (ζ-потенциалом) и механизмами адсорбционного взаимодействия с катионными загрязнителями.

Обаснован синергетический эффект структурной активации диатомита углеродными наночастицами малой концентрации, приводящий к направленному изменению текстурных параметров без разрушения менеральной матрицы. Доказана роль поверхностого заряда и химической природы активных центров в формировании механизма многослойной хемосорбции метиленового синего.

Разработанные научные положения вносят вклад в развитие теории адсорбционных процессов на гибридных кремнезем-углеродных системах и могут служить основой для дальнейшего проектирования функциональных сорбентов с регулируемыми свойствами.

Практическая значимость.

Практическая значимость работы заключается в возможности применения разработанных наноструктурированных сорбентов на основе казахстанского диатомита в технологиях очистки воды от загрязняющих веществ. Полученные результаты могут быть использованы при создании экономически эффективных и экологически безопасных систем водоочистки, а также в образовательном процессе по программе 6D074000 – Нанотехнологии и наноматериалы.

Связ данной работы с другими научно-исследовательскими работами.

Диссертационная работа выполнена в рамках проекта грантового финансирования «Получение композиционных материалов на основе диатомита» (2025-2027 гг.) по программе «Жас ғалым», реализуемого при поддержке Комитета науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан.

Публикации.

Основные результаты диссертации опубликованы в 18 печатных работах, из которых: 6 – статьи, входящие в базу данных Scopus; 1 – патент на изобретение; 3 – статьи, опубликованные в изданиях, рекомендованных Комитетом обеспечению качества в сфере науки и высшего образования

МНВО РК; 7 – тезисы в сборниках международных и региональных научно-практических конференций; 1 – публикация в книге.

Личный вклад докторанта в подготовку публикаций заключался в анализе литературных данных, участие в постановке и проведении экспериментов,получение и обработке экспериментальных результатов, их интерпретации, а также в подготовке материалов к публикации.

По теме диссертации опубликованы следующие работы:

1. «The use of diatomite as a catalyst carrier for the synthesis of carbon nanotubes», – Nanomaterials.
2. «Carbon nanoparticles and diatomaceous earth hybrids: a synergistic approach for methylene blue uptake», – Environmental science and pollution research.
3. «Efficient Pb(II) adsorption by natural mugaldzhar diatomite: isotherm, kinetic and thermodynamic analysis» – Journal of composites science.
4. «Raman characteristics of multiwall carbon nanotubes on diatomite» – Eurasian Chemico-Technological Journal.
5. «Use of pure diatomite for the sorption of heavy metal ions» – Горение и плазмохимия.
6. «Acid modification of diatomite-based sorbents» – Eurasian Chemico-Technological Journal.
7. «Табиғи диатомит негізінде сорбенттер алу» – ҚазҰТЗУ хабаршысы.
8. «Al/diatomite based composite materials» – News of the national academy of sciences of the Republic of Kazakhstan. Series Chemistry and Technology.
9. «Carbon nanotubes synthesized by CCVD method using diatomite and shungite minerals» – Eurasian Chemico-Technological Journal.
10. «Diatomite a naturally occurring bioinspired Nanomaterial with complex shape and its application in synthesis of MWCNTs as a substrate» – Белая книга по нанотехнологиям.
11. Патенте «Способ изготовления мембран на основе природного диатомита» (патент № 6794 от 31.12.2021).
12. Материалы докладов научных конференций и симпозиумов.

Обьем и структура диссертации.

Диссертационная работа представлена на 111 страницах печатного текста и содержит 56 рисунка и 15 таблиц. Работа состоит из введения, обзора литературы, описания обьектов и методов исследования, результатов и их обсуждения, заключения, списка использованных источников из 152 ссылок и 1 приложения А, патент.