АҢДАТПА

«6D074000 - Наноматериалдар және нанотехнология» мамандығы бойынша философия докторы (PhD) дәрежесін алу үшін диссертациялық жұмысқа

НҰРҒАИН АРАЙЛЫМ

«Су тазалау үшін диатомит негізіндегі наноқұрылымды сорбенттерді өңдеу»

Жұмыстың жалпы сипаттамасы. Бұл диссертация Мұғалжар кен орнынан алынған табиғи диатомиттің адсорбциялық қасиеттерін және оның негізінде сулы ерітінділерді ауыр металдар мен органикалық бояғыштардан тазарту үшін наноқұрылымды сорбенттерді әзірлеуді зерттейді.

$Pb2^{+}$ иондарын тиімді түрде жоятыны , ал адсорбция процесі өздігінен және эндотермиялық сипатта болатыны және жалған екінші ретті кинетикалық модельмен және Ленгмюр мен Фрейндлих изотермаларымен сипатталатыны анықталды .

Табиғи диатомиттің дамыған кеуекті құрылымы мен жоғары химиялық және термиялық тұрақтылығы бар екені дәлелденген, бұл оны функционалды сорбциялық материалдарды жасау үшін перспективалы матрица етеді. Диатомиттің гидрофильді көміртек нанобөлшектерімен (2-5 масс.%) модификациясы құрылымды бұзбай, меншікті беткі ауданын, кеуек көлемін және белсенді орталықтар санын арттырады.

Метилен көк түсінің адсорбциясы негізінен хемосорбция механизмі арқылы жүретіні және Элович моделімен және Фрейндлих изотермасымен сипатталатыны анықталды.

Диатомиттің темір құрамдас қосылыстармен модификациялануы бөлшектердің өлшемі шамамен 30-38 нм және қанығу магниттелуі 10,9 эму/г дейінгі магнитті нанокомпозиттерді алуға мүмкіндік берді, бұл жылдам магниттік бөлінуді қамтамасыз етеді.

Зерттеу тақырыбының өзектілігі. Ауыр металдармен және органикалық қосылыстармен судың ластануы күрделі экологиялық мәселе болып қала береді. Өнеркәсіптік өндірістің өсуі, тау-кен өндірісінің, металлургияның және химия өнеркәсібінің дамуы қоршаған ортаға улы заттардың шығарындыларының артуымен қатар жүреді. Олардың ішінде қорғасынды қоса алғанда, ауыр металдар ерекше қауіп төндіреді, себебі олар өте тұрақты, улы және тірі организмдерде жиналуы мүмкін. Су экожүйелеріне антропогендік жүктеменің артуы суды тазартудың жаңа шешімдерін іздеуді қажет етеді.

Осыған байланысты, басым міндеттердің бірі - қауіпті ластаушы заттарды минималды шығынмен және экологиялық талаптарға сәйкес жоюды қамтамасыз ететін тиімді сорбциялық материалдарды әзірлеу.

Табиғи ресурстарды ұтымды пайдалану зерттеуге қосымша маңыздылық қосады. Қазақстанда қазіргі уақытта шектеулі түрде пайдаланылатын диатомиттердің айтарлықтай қорлары бар. Дегенмен, бұл

материал халықаралық деңгейде сүзу және суды тазарту технологияларында, сондай-ақ химия және құрылыс салаларында кеңінен қолданылады. Мұндай ресурстарды экономикалық айналымға енгізу шикізат базасын кеңейтіп қана қоймай, сонымен қатар өзекті экологиялық мәселелерді шешуге де көмектеседі.

Осылайша, қазақ диатомитін пайдаланып наноқұрылымды сорбенттерді әзірлеу маңызды ғылыми және практикалық міндет болып табылады. Оның өзектілігі суды тазартатын және судың ластануымен байланысты экологиялық тәуекелдерді азайтатын тиімді және қолжетімді материалдарды өндіру қажеттілігінен туындайды.

Жұмыстың мақсаты - суды ластаушы заттардан тиімді тазартуды қамтамасыз ететін адсорбциялық қасиеттері бар Мұғалжар диатомитіне негізделген наноқұрылымды сорбенттерді әзірлеу.

Жұмыстың мақсаттары. Осы диссертацияның мақсатына жету үшін келесі мақсаттар қойылды:

1. Мұғалжар диатомитінің ауыр металл иондарына, атап айтқанда қорғасын иондарына қатысты сорбциялық қасиеттерін материалдың құрылымдық, текстуралық және физико-химиялық сипаттамаларын талдау негізінде анықтау.
2. Диатомит пен гидрофильді көміртек нанобөлшектеріне негізделген гибридті материалдарды алу және бұл модификацияның материалдың қасиеттеріне әсерін анықтау.
3. Алынған гибридті материалдардың катионды органикалық бояғыштарға қатысты адсорбциялық сипаттамаларын анықтау (адсорбциялық кинетика және изотермалар, максималды адсорбциялық сыйымдылық).
4. Мұғалжар кен орнынан алынған табиғи диатомитті темір сульфатын пайдаланып модификациялаудың әсерін анықтау және магниттік композиттік сорбенттерді алудың оңтайлы қатынасын анықтау.

Қорғауға ұсынылған негізгі ережелер:

1. Мұғалжар диатомитінің Pb^{2+} (61,5-74,9 мг/г) адсорбциялық қабілетінің 25-45 ºС диапазонындағы температураға тәуелділігі оны сулы ерітінділерден қорғасын иондарын адсорбциялық жолмен алу процестерінде қолдану мүмкіндігін көрсетеді .
2. Табиғи диатомитті құрылымдық белсендіру әдісі шамамен 15-20 нм бөлшектер өлшемі бар гидрофильді көміртекті нанобөлшектерді (5 масс.%) қолдана отырып, текстуралық сипаттамалардың мақсатты өзгеруін, меншікті беткі ауданның 38-ден 50 $м^2$/г-ға дейін және жалпы кеуек көлемінің 0,148 $см^3$/г-ға дейін артуын қамтамасыз етеді, сонымен қатар минералды матрица құрылымының тұтастығын сақтайды.
3. Диатомит пен гидрофильді көміртек нанобөлшектеріне (5 масс.%) негізделген гибридті сорбент метилен көк үшін 464,9 мг/г дейін адсорбциялау қабілетіне ие (таза диатомит – 457,2 мг/г) ; сорбент 2-9 кең pH диапазонында тұрақты, бұл ζ-потенциал нәтижелерімен расталады.
4. Мұғалжар кен орнынан алынған табиғи диатомит негізінде темір (II) сульфатын пайдаланып, шамамен 30-38 нм өлшемді магнетит

нанобөлшектерін (Fe_3O_4) түзу әдісі әзірленді; алынған материал 55 $м^2$/г меншікті беттік ауданымен және 10,9 эму/г магниттелуімен сипатталады.

Зерттеу нысаны - Ақтөбе облысының Мұғалжар ауданында өндірілетін Қазақстан диатомиті, сондай-ақ оның негізінде алынған нанокомпозиттер (магниттік және гибридті нанокомпозиттер).

Зерттеу тақырыбы - диатомиттің модификациялану процестері, оның негізінде нанокомпозиттердің түзілуі және олардың құрылымдық және адсорбциялық қасиеттері.

Зерттеу әдістері

Мақсатқа жету және қойылған міндеттерді шешу үшін келесі зерттеу әдістері қолданылды: термогравиметриялық талдау (TGA), сканерлеуші электронды микроскопия (SEM), трансмиссиялық электронды микроскопия (TEM), оптикалық микроскопия, Брунауэр-Эммель-Теддер талдауы (BET), энергия-дисперсиялық рентгендік талдау (EDS), Раман спектроскопиясы (Раман спектроскопиясы), инфрақызыл спектроскопия (ИҚ), рентгендік дифракциялық талдау (XRD), ультракүлгін-көрінетін спектроскопия (UV-VIS), атомдық-абсорбциялық спектроскопия (AAS), гранулометриялық құрам мен бөлшектердің өлшемін анықтау (лазерлік гранулометрия арқылы), ζ-потенциалды өлшеу, элементтік талдау: (CNH-талдау), SQUID-асқын өткізгіш кванттық интерференциялық магнитометрия, механохимиялық өңдеу әдісі және ультрадыбыстық өңдеу.

Жұмыстың ғылыми жаңалығы

Бұл жұмыста алғаш рет келесі нәтижелер алынды:

1. Алғаш рет Мұғалжар кен орнынан алынған модификацияланбаған диатомиттің сорбциялық қасиеттері анықталды, Pb^{2+} үшін максималды адсорбциялық сыйымдылық 74,9 мг/г құрайды, бұл материалдың сулы ерітінділерді қорғасыннан тазартудағы жоғары тиімділігін көрсетеді.
2. Алғаш рет диатомит пен гидрофильді көміртек нанобөлшектеріне (5 масс.%) негізделген гибридті материалдар алынды және оларды модификациялау синергетикалық әсерге әкелетіні анықталды: меншікті бетінің ауданы 12 $м^2$/г-ға және жалпы кеуек көлеміне артады, бұл диатомит минералды матрицасының құрылымдық белсенділігін көрсетеді.
3. Алынған гибридті материалдардың адсорбциялық сипаттамалары метилен көк адсорбциясының қазақ диатомитіне және оның гибридті формаларына хемосорбциялық механизмін растайды, бұл Элович кинетикалық моделіне (R^2 = 0,9848) сәйкес келеді, есептелген және эксперименттік мәндердің жақындығын көрсетеді.
4. Мұғалжар кен орнынан алынған табиғи диатомитті тұндыру арқылы модификациялау, содан кейін темір сульфатының термиялық ыдырауы диатомиттің темірге оңтайлы қатынасында 1:1,7 магнетит нанобөлшектерінің пайда болуына және меншікті бетінің ауданының 15 $м^2$/г-ға ұлғаюына әкелетіні анықталды.

Теориялық маңыздылығы.

Бұл зерттеуде алынған нәтижелер табиғи кремний диоксиді бар минералдарды көміртегі және магниттік нанобөлшектермен

модификациялаудың негізінде жатқан физика-химиялық механизмдер туралы негізгі түсінігімізді кеңейтеді. Диатомиттің құрылымдық және текстуралық сипаттамалары (меншікті беткі ауданы, кеуек көлемі және кеуек өлшемінің таралуы), беттік заряды (ζ-потенциалы) және катиондық ластаушы заттармен адсорбциялық өзара әрекеттесу механизмдері арасында байланыстар орнатылды.

Диатомиттің төмен концентрациялы көміртекті нанобөлшектермен құрылымдық белсенділігінің синергетикалық әсері көрсетілді, бұл минералды матрицаны бұзбай текстуралық параметрлердің мақсатты өзгерістеріне әкеледі. Метилен көк түсінің көп қабатты хемосорбция механизмінің қалыптасуындағы беттік зарядтың және белсенді учаскелердің химиялық табиғатының рөлі көрсетілді.

Әзірленген ғылыми қағидалар гибридті кремний-көміртекті жүйелердегі адсорбциялық процестер теориясының дамуына ықпал етеді және реттелетін қасиеттері бар функционалды сорбенттерді одан әрі жобалау үшін негіз бола алады.

Практикалық маңыздылығы.

Бұл жұмыстың практикалық маңыздылығы ластаушы заттарды кетіруге арналған суды тазарту технологияларында қазақстандық диатомит негізінде жасалған наноқұрылымды сорбенттерді қолдану мүмкіндігінде жатыр. Алынған нәтижелерді үнемді және экологиялық таза суды тазарту жүйелерін әзірлеуде, сондай-ақ 6D074000 – Нанотехнология және наноматериалдар бағдарламасы бойынша білім беру бағдарламаларында пайдалануға болады.

Бұл жұмыстың басқа ғылыми жұмыстармен байланысы.

Диссертация Қазақстан Республикасы Ғылым және жоғары білім министрлігінің Ғылым комитетінің қолдауымен жүзеге асырылатын «Жас ғалым» бағдарламасы бойынша «Диатомит негізінде композиттік материалдарды алу» (2025-2027) гранттық қаржыландыру жобасы аясында орындалды.

Басылымдар.

Диссертацияның негізгі нәтижелері 18 баспа жұмысында жарияланды, оның ішінде: Scopus дерекқорына енгізілген 6 мақала; өнертабысқа 1 патент; Қазақстан Республикасы Жоғары білім министрлігінің Ғылым және жоғары білім беру саласындағы сапаны қамтамасыз ету комитеті ұсынған журналдарда жарияланған 3 мақала; халықаралық және аймақтық ғылыми-практикалық конференциялар материалдарында 7 тезис; кітапта 1 жарияланым.

Докторанттың басылымдарды дайындауға қосқан жеке үлесі әдеби деректерді талдауды, эксперименттерді орнатуға және жүргізуге қатысуды, эксперименттік нәтижелерді алуды және өңдеуді, оларды түсіндіруді және жариялауға материалдарды дайындауды қамтыды.

Диссертация тақырыбы бойынша келесі еңбектер жарияланды:

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. Ғылыми конференциялар мен симпозиумдардың материалдары.

Диссертацияның көлемі мен құрылымы.

Диссертация 111 беттік баспа мәтінінде ұсынылған және 56 сурет пен 15 кестеден тұрады. Ол кіріспеден, әдебиеттерге шолудан, зерттеу нысандары мен әдістерінің сипаттамасынан, нәтижелерден және оларды талқылаудан, қорытындыдан, 152 әдебиеттер тізімінен және А қосымшасынан бір патенттен тұрады.