

АННОТАЦИЯ

диссертации на тему «Сорбционная очистка воды от ионов тяжелых металлов с помощью сульфоугля и модифицированного анионита» на соискание степени доктора философии (PhD) по образовательной программе 8D05311-«Химия»

Мурзакасымовой Назгуль Саттаркуловны

Тема исследования: «Сорбционная очистка воды от ионов тяжелых металлов с помощью сульфоугля и модифицированного анионита»

Цель исследования:

Разработка новых сорбционных материалов на основе сульфированного природного угля и модифицированного лимонной кислотой анионита для снижения негативного воздействия катионов тяжелых металлов на водные объекты.

Задачи исследования:

1. Синтез и изучение физико-химических свойств поверхности сорбентов на основе модифицированного серной кислотой угля Шубаркульского месторождения и модифицированного лимонной кислотой анионита (AB-17-8: $C_6H_8O_7$);
2. Рассчитать термодинамические характеристики адсорбции и значения энергий специфических взаимодействий на исходных и модифицированных анионите и сульфоугле.
3. Выявление закономерностей адсорбции катионов тяжелых металлов, сравнительная оценка полярности, сорбционной емкости и эффективности сорбентов по отношению к распространенным катионам тяжелым металлам $Cu(II)$, $Ni(II)$, $Hg(II)$ при влиянии основных природных факторов t , $^{\circ}C$, pH и количественное присутствие катионов.
4. Предложить рекомендации по использованию сорбентов на основе модифицированного угля и анионита для экологической очистки воды и сорбционного концентрировании катионов тяжелых металлов.

Методы исследования:

теоретические: - данные по кинетике сорбции катионов тяжелых металлов на сульфоугле, измерения ζ -потенциала и суспензионного эффекта могут свидетельствовать об отрицательно заряженной поверхности сульфоугля в рабочем интервале pH 5.5–7, что доказано адсорбцией СКМ и кислотно-основных индикаторов.

-В оптимальных условиях по данным изотерм сорбции СКМ на сульфоуголь определены величины предельной сорбции индивидуальных катионов и суммы катионов металлов и соответственно константы равновесия процесса сорбции-десорбции катионов. При pH в интервале 5.6–6.8 для которых проведены элементный, РФА и ИК-спектроскопический анализы; определены константы растворимости K_s .

эмпирические: В работе использованы следующие современные физико-химические методы исследования: ИК-спектроскопия, адсорбционная порометрия, растровая электронная микроскопия, спектрофотометрия, термогравиметрия.

Основные положения, выносимые на защиту (доказаны научные гипотезы и другие выводы, составляющие новизну):

1. Способность угля, модифицированного концентрированной серной кислотой (сульфоугля), сорбировать тяжелые металлы (Cu(II), Ni(II), Hg(II)) в 1,3-1,4 раза выше исходного угля.

2. Способность анионита, модифицированного лимонной кислотой (АВ-17-8:С₆Н₈О₇), сорбировать катионы тяжелых металлов (Cu(II), Ni(II), Hg(II)) в 1,2-1,7 раза больше.

3. В результате модификации анионита (АВ-17-8:С₆Н₈О₇) кислотой увеличивается количество слабых кислотно-основных центров в области рКа 4,1-5,5, увеличивается реадсорбционная способность, появляются специальные электростатическое взаимодействие поверхности увеличивается.

Обоснование новизны и значимости полученных результатов и соответствия направлениям научного развития или государственным программам:

1. Научная новизна:

- Для исследования влияния условий нанесения модификатора на распределение пор и на активность полученных сорбентов синтезированы серии новых сорбентов модифицированных анионитов и углей. Впервые подход нанесения активной композиции на поверхность инертного структурированного первичного носителя, обеспечивающего необходимые текстурные характеристики, термическую и механическую стабильность сорбента распространен анионит и угли Шебаркульского месторождения.

- Показано, что использование серной кислоты в качестве модификатора уникальной пористой структуры Шебаркульских углей влияет на формирование и распределение катионов Me(II) на поверхности: наблюдается два типа сорбции катионов Me(II): размером 0,5-3,0 нм, локализованных преимущественно внутри пор сульфоугля, и более крупных частиц (4-8 нм), находящихся на внешней поверхности сульфоугля.

- Впервые исследована зависимость сорбции катионов тяжелых металлов на сульфоугле и АВ-17-8:С₆Н₈О₇ от pH. В результате построены изотермы сорбции СКМ и отдельных катионов металлов, аппроксимированные регрессионными уравнениями. Данные изотермы имеют тип Ленгмюра, относящийся к мономолекулярному типу адсорбции.

- Высказано предположение, что отличие мольного соотношения компонентов в адсорбате от стехиометрического может служить доказательством адсорбции катионов металлов на различных активных центрах сульфоугля, наличие которых показано индикаторным методом Гаммета.

2. Основные результаты исследования:

- Обработка Шубаркольского угля серной кислотой H_2SO_4 и анионита $8:C_6H_8O_7$ лимонной кислотой позволила получить сорбенты с высокой сорбционной емкостью по отношению к катионам тяжелых металлов.

- В оптимальных условиях по данным изотерм сорбции СКМ на сульфоуголь определены величины предельной сорбции индивидуальных катионов и суммы катионов металлов и соответственно константы равновесия процесса сорбции-десорбции катионов. При pH в интервале 6–8 для которых проведены элементный, РФА и ИК-спектроскопический анализы; определены константы растворимости K_s . Высказано предположение, что отличие мольного соотношения компонентов в адсорбате от стехиометрического может служить доказательством адсорбции катионов металлов на различных активных центрах сульфоугля, наличие которых показано индикаторным методом Гаммета.

- Исследована зависимость сорбции катионов тяжелых металлов на АВ-17-8: $C_6H_8O_7$ и сульфоугле от pH. В результате построены изотермы сорбции СКМ и отдельных катионов металлов, аппроксимированные регрессионными уравнениями. Данные изотермы имеют тип Ленгмюра, относящийся к мономолекулярному слою адсорбции. С помощью лианеризации начального участка изотермы определены предельные величины сорбции индивидуальных катионов ($a_{\infty} = 1.07$ ммоль/г) и суммы катионов металлов ($a_{\infty} = 1.14$ ммоль/г), а также их константы сорбции-десорбции ($K_{ind} = 388$ и $K_{sum} = 109.6$). Величина предельной сорбции исходного анионита 0.012 ммоль/г, что меньше чем у АВ-17-8: $C_6H_8O_7$, который является эффективным адсорбентом для СКМ.

- Показана возможность адсорбционного извлечения СКМ при концентрации менее 0.002 моль/л и полного извлечения (~100 %) из воды на АВ-17-8: $C_6H_8O_7$ и сульфоугле.

3. Практическая значимость

- При обработке Шубаркольского угля серной кислотой H_2SO_4 протекает реакция сорбции $Me(II)$, в результате которой образуются фенольные группы углерода и кислотные группы $-SO_3H$, $-COOH$, $-OH$, позволило получить сорбент с высокой сорбционной емкостью по отношению к катионам тяжелых металлов.

- Показана возможность адсорбционного извлечения СКМ при концентрации менее 0.002 моль/л и полного извлечения (~100 %) из промышленных вод на сульфоугле и АВ-17-8: $C_6H_8O_7$.

- Рассчитаны термодинамические характеристики адсорбции катионов тяжелых металлов на сульфоуглероде и АВ-17-8: $C_6H_8O_7$.

- Полученные результаты послужат основой создания сорбционной системы для адсорбции тяжелых металлов из воды природного и технического происхождения, в том числе для очистки сбросовых вод химических, фармацевтических и других предприятий.

4. Диссертационная работа соответствует приоритетному направлению развития науки: «Рациональное использование природных ресурсов, в том числе водных, геология, добыча и переработка полезных ископаемых и углеводородов, новые материалы и технологии, безопасные изделия и конструкции».

Связь темы диссертации с научно-исследовательской работой и различными государственными программами.

Работа выполнена на основе государственного грантового финансирования по проекту BR24992867 «Разработка ресурсосберегающих технологий для развития и управления водохозяйственными и перерабатывающими отраслями Казахстана, создание инновационного инжинирингового центра».

Описание вклада докторанта в подготовку каждого издания (доля автора диссертации указывается в процентах от общего текста):

По результатам исследования опубликовано 17 работ, из них 1 статья (Mendeleev Communications, квартиль – 46, Q 3) в *Международных рецензируемых журналах, включенных в наукометрическую базу данных Scopus*.

1. Control for selective sorption of heavy metals cations with anion exchanger AB-17-8 by modifying the surface with citrate groups. MendeleevCommunications.34(5) 2024, P. 755-757. (соавторы Бектенов Н.А., Серебряков К.В., Елкин У.С., Гавриленко М.А., доля докторанта 80%)

5 статьи опубликованные в изданиях, рекомендованных Комитетом по обеспечению качества в сфере науки и высшего образования МНВО РК:

1. Production of sulfocationite by modification of natural coal with concentrated sulfuric acid. News of the Academy of Sciences of the Republic of Kazakhstan. Series of Chemistry and Technology. № 3. 2020.- P. 104-109. (соавторы Бектенов Н.А., Гавриленко М.А., Нурлыбаева А.Н., доля докторанта 80 %)

2. Сорбция редкоземельных металлов: литературный обзор. Қазақстанның химиялық журналы №3. 2020.-С. 214-235. (соавторы: Бектенов Н. А., 20%, Гавриленко М.А. доля докторанта 80 %)

3. Modified sorbents and their application for extraction of metal ions. News of the National Academy of Sciences of the Republic of Kazakhstan. Series of Chemistry and Technology. №1. 2021.- P. 75-79. (соавторы Бектенов Н. А., Гавриленко М.А., доля докторанта 80 %)

4. Investigation of the sorption of heavy metals on modified coal. News of the National Academy of Sciences of the Republic of Kazakhstan. Series Chemistry and Technology. №4. 2022. – P. 118-125. (соавторы: Гавриленко М.А., Бектенов Н. А. 20%, Кудайбергенова Р.М., Сейтбекова Г.А., доля докторанта 80 %)

5. Sorption purification of water from heavy metal ions using sulfogl. Chemical Journal of Kazakhstan №1.(81) 2023.- P. 75-82. (соавторы Гавриленко

М.А., Бектенов Н. А., Кудайбергенова Р.М., Байбазарова Э.А., доля докторанта 80 %)

11 статьи в материалах международных научно-практических конференции, в том числе дальнего и ближнего зарубежья:

1. Загрязнение водных ресурсов различными веществами. «Digital Kazakhstan: цифрандырудың жаһандық трендтері және халықаралық тәжірибе». Халықаралық ғылыми практикалық конференция материалдары. 2019. Б. 208-213. (соавторы Камбарова Э.А., доля докторанта 70 %)

2. Эффективные способы отчистки тяжелых металлов ионитами и модификация ионитов. Вестник ТарГУ имени М.Х.Дулати. № 27. 2019г.С.24-32. (соавторы Бектенов Н. А., Камбарова Э.А., доля докторанта 70 %)

3. Новые хелатообразующие сорбенты. IV Всероссийский научный симпозиум «Актуальные проблемы теории и практики гетерогенных катализаторов и адсорбентов» 1 – 3 июля 2019г. Международная конференция, Иваново-Суздаль. С.29-31 (соавторы Бектенов Н. А., Камбарова Э.А., доля докторанта 50 %)

4. Модифицирование анионита лимонной кислотой для эффективной сорбции. Международный симпозиум «Проблемы геологии и освоение недр» Том II, Россия-2020. С. 357-358. (соавторы Бектенов Н.А., Камбарова Э.А., Гавриленко М.А., доля докторанта 60 %)

5. Исследование возможности очистки сточных вод от ионов металлов на новых сорбентах. Международный симпозиум «Проблемы геологии и освоение недр», Том II, Россия-2020. С. 348-349. (соавторы Бектенов Н.А., Камбарова Э.А., Гавриленко М.А., доля докторанта 40 %)

6. Получение новых перспективных комплексообразующих ионитов и их квантово-химические расчеты. Материалы Международной научно-практической конференции «Актуальные проблемы экологии и безопасности жизнедеятельности человека в XXI веке». Том I. Тараз-2021, С. 42-47. (соавторы Бектенов Н. А., Садыков Қ., Қасымбекова Д., доля докторанта 70 %)

7. Создание новых полифункциональных ионообменников и их применение. «Тонкий органический синтез-2021г.» Материалы научной конференции, Алматы-2021г. С. 19-21. (соавторы Бектенов Н.А., Камбарова Э.А., доля докторанта 50 %)

8. Перспективы применения ионообменных материалов в области колориметрических методов анализа. Международная научно-практическая конференция. «Тенденции, перспективы и инновационные подходы развития химической науки, производства и образования в условиях глобализации», посвященная 80-летию со дня рождения выдающегося казахстанского ученого-интернационалиста – академика НАН РК Ергожин Едил Ергожаевича. Алматы-2021ж. 87-90б. (соавторы Гавриленко М.А., Бектенов Н.А., Камбарова Э.А., доля докторанта 50 %)

9. Sorption suction of lanthanum ion with new modified sorbents. Mechanics and Technology / Scientific journal 2023, No.2(80) P. 219-222 (соавторы Kalibekova A.N., Kasen A.K., доля докторанта 90 %)

10. Sorption capacity of mixed sorbent. *Mechanics and Technology / Scientific journal*. – 2023. No.4(82). – P.112-115. (соавторы Sembek A., Sayabay A., Begenov A., Serikbayev Sh., Elamanova S.Zh., доля докторанта 90 %)

11. Ауыр метал катиондарының сорбциясына сульфокөмірдің қышқылдық –негіздік орталықтарының әсері. XII Международный Бсремжановский съезд по химии и химической технологии, 4-6 декабря, 2024, Алматы, Казахстан. Сборник тезисов докладов [Электронное издание]. — Алматы: НАО «КазНУ им. аль-Фараби», 2024. – 222 с.(соавторы Ергімбай С.Е., Рызкия Б.С., доля докторанта 90 %)

Структура и объем работы. Диссертационная работа состоит из стандартных разделов: нормативные ссылки, обозначения и сокращения, введение, обзор литературы, экспериментальная часть, результаты экспериментов и их обсуждение, список использованной литературы и приложение.

Научный консультант:

Д.х.н., профессор кафедры химии

Казахского национального педагогического университета имени Абая



РАСТАЙМЫН:	«Абай атындағы ҚазНПУ» ЖЕАҚ
КАДР СЯСАТЫ БАСҚАРМАСЫНЫҢ ЖЕТЕКШІСІ	
ЗАВЕРЯЮ	Н.А.Бектенов
	РУКОВОДИТЕЛЯ
	УПРАВЛЕНИЯ КАДРОВОЙ ПОЛИТИКИ
ҚОЛЫ	НАО «КазНПУ им. Абая»
ПОДПИСЬ	