



Axror YARKULOV,
Kimyo fanlari doktori (DSc), dotsent
O‘zbekiston Milliy Universiteti, Toshkent, O‘zbekiston
E-mail: a.yarkulov80@gmail.com, ORCID: 0000-0003-2165-855X

Prof., k.f.d. M.Mahkamov taqrizi asosida

N-GEPTAN MOLEKULASINING DIATSETATSELLYULOZA-KREMNEZEM GIBRID BIONANOKOMPOZITSIYASIGA ADSORBSIYALANISHINI SORBTSION-STRUKTURAVIY TAHLILI

Annotatsiya

303 K da ammiak molekulasini diatsetatsellyuloza(DAS)-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasiga adsorbsiyalanish izoterma olindi. Adsorbsiya izoterma Lengmyur, BET va Aranovich izoterma modellari tenglamalaridan foydalanib sorbsion-struktura ko‘rsatkichlari hisoblab topildi. Bunda model konstantalari sirtning energetik jihatdan faol ekanligini, adsorbent sirtida kuchli adsorbent–adsorbat o‘zaro ta’sirlar mavjudligini, birinchi monoqatlam aniq va barqaror shakllangan bo‘lib asosan fizikaviy adsorbsiyalanish jarayoni borishini ko‘rsatdi. Solishtirma sirt yuzasining yuqori qiymati adsorbentda energetik jihatdan geterogen va faol yuqori adsorbsion sig‘im mavjudligini hamda o‘rtacha g‘ovak radiusi esa mikro-mezog‘ovakli ierarxik strukturadan iborat ekanligini ko‘rsatdi.

Kalit so‘zlar: adsorbsiya, izoterma, diatsetatsellyuloza, kremnezem, n-geptan, Lengmyur, BET, Aranovich.

СОРБЦИОННО-СТРУКТУРНЫЙ АНАЛИЗ АДСОРБЦИИ МОЛЕКУЛЫ n-ГЕПТАНА НА ДИАЦЕТАТЦЕЛЛЮЛОЗНО-КРЕМНЕЗЕМНОМ ГИБРИДНОМ БИОНАНОКОМПОЗИТЕ

Аннотация

При температуре 303 К получена изотерма адсорбции молекулы аммиака на диацетатцеллюлозно-кремнеземном (ДАЦ–кремнезем) гибридном бионаноконпозите. На основе уравнений изотерм Ленгмюра, БЭТ и Арановича рассчитаны сорбционно-структурные характеристики. Полученные модельные константы свидетельствуют об энергетически активной поверхности, наличии сильных взаимодействий адсорбент–адсорбат на поверхности адсорбента, формировании четко выраженного и устойчивого первого монослоя, а также о преимущественно физическом характере процесса адсорбции. Высокие значения удельной поверхности указывают на энергетически гетерогенную и активную поверхность с высокой адсорбционной ёмкостью, тогда как средний радиус пор подтверждает наличие иерархической микро-мезопористой структуры.

Ключевые слова: адсорбция, изотерма, диацетатцеллюлоза, кремнезем, n-гептан, Ленгмюр, БЭТ, Аранович.

SORPTION–STRUCTURAL ANALYSIS OF n-HEPTANE MOLECULE ADSORPTION ON A DIACETATECELLULOSE–SILICA HYBRID BIONANOCOMPOSITE

Annotation

At 303 K, an adsorption isotherm of the ammonia molecule on a diacetate cellulose (DAC)–silica hybrid bionanocomposite was obtained. Using the equations of the Langmuir, BET, and Aranovich isotherm models, the sorption–structural parameters were calculated. The model constants indicate that the surface is energetically active, strong adsorbent–adsorbate interactions are present on the adsorbent surface, and a well-defined and stable first monolayer is formed, with the adsorption process proceeding predominantly via physical adsorption. The high specific surface area values demonstrate the presence of an energetically heterogeneous and active surface with high adsorption capacity, while the average pore radius confirms a hierarchical micro–mesoporous structure.

Keywords: adsorption, isotherm, diacetatecellulose, silica, n-heptane, Langmuir, BET, Aranovich.

Kirish. Adsorbent materialarning sorbsion-struktura ko‘rsatkichlari - ya’ni BET sirt maydoni, umumiy g‘ovak hajmi, mikrog‘ovak hajmi va g‘ovak o‘lchami taqsimoti—ularning adsorbsion samaradorligini aniqlovchi asosiy parametrlar hisoblanadi [1, 2]. Qutbsiz molekular - masalan, n-geksan, n-geptan va benzol - yuqori uchuvchan, gidrofob va inert xususiyatlari bilan ajralib turadi. Ularning bug‘ fazasida yoki suyuqlik muhitida adsorbsiyasi nafaqat ekologik ifloslantiruvchi moddalarni yo‘qotishda, balki adsorbentning haqiqiy sorbsion-struktura ko‘rsatkichlarini aniqlashda ham qulay model sifatida qo‘llaniladi [3].

So‘nggi yillarda selluloza/kremnezem gibrid bionanokompozitsiyalari ekologik toza, qayta tiklanadigan va mexanik jihatdan barqaror adsorbent sifatida e’tiborni tortmoqda [4-7].

Shunday qilib, ushbu tadqiqotning maqsadi-diatsetatsellyuloza(DAS)-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasining haqiqiy sorbsion-struktura ko‘rsatkichlarini qutbsiz molekula n-geptan adsorbsiyasi asosida aniqlash va natijalarni Lengmyur, Brunauer-Emmet-Teller (BET) va Aranovich izoterma modellari yordamida sorbsion-strukturaviy tahlil qilishdir. Ushbu yondashuv kelajakda ekologik xavfsiz va yuqori samarali sorbentlar ishlab chiqishda ilmiy asos yaratadi.

Tadqiqot metodologiyasi. Zol-gel usulida olingan DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasini n-geptan bug‘i bilan adsorbsiyalanish izotermalarini o‘lchash uchun universal yuqori vakuumli pretsizion adsorbsion-kalorimetrik uskuna va unga ulangan Tian-Kalve DAK-1-1A turidagi differensial mikrokalorimetrl sistemadan foydalanildi.

Tadqiqotda qo‘yidagi adsorbsion izoterma modellaridan foydalanildi:

Lengmyur modeli

$$a = a_m \frac{kp}{1+kp} \quad (2)$$

bu yerda a -adsorbsiya, mmol/g; a_m -monoqavat sig'imi, mmol/g; k -muvozanat konstantasi. $S_L = a_m \cdot N_A \cdot \sigma$; bu yerda S_L -Lengmyur bo'yicha adsorbentni solishtirma sirt yuzasi, m²/g; a_m -monoqavat sig'imi, mmol/g; σ -adsorbat molekulasining kesim yuza maydoni, m².

BET modeli

$$X / X_m = C(P / P_0) / (1 - P / P_0) (1 + (C - 1)P / P_0)$$

bu yerda X -adsorbsiya, mmol/g; X_m -adsorbsiya sig'imi, mmol/g; C -BET konstantasi; $S_{BET} = X_m \cdot N_A \cdot \sigma$; bu yerda S_{BET} -BET bo'yicha adsorbentni solishtirma sirt yuzasi, m²/g.

Aranovich modeli

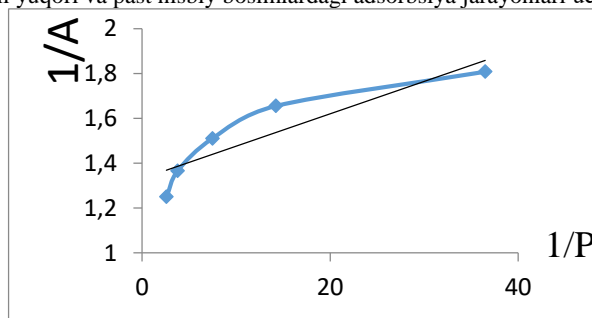
$$a = a_m \frac{KP/P_s}{[1+KP/P_s](1-P/P_s)^{0.5}} \quad (4)$$

bu yerda a -adsorbsiya mmol/g; a_m -maksimal adsorbsiya mmol/g, K -polimolekulyar adsorbsiyaning muvozanat konstantasi,

Olingan natijalar va ularning xulosasi

Langmuir modeli adsorbsion jarayonini molekulyar darajada tavsiflaydigan klassik izotermal modellardan biridir. Bu model 1916-yilda Irving Langmuir tomonidan ishlab chiqilgan va u gaz yoki eritmadagi adsorbat molekularining qattiq sirtga adsorbsiyalanishini tushuntiradi.

Asosan Lengmyur modeli yuqori va past nisbiy bosimlardagi adsorbsiya jarayonlari uchun qo'llaniladi [8].



1-rasm. DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasining Lengmyur tenglamasi koordinatalarida n-geptan bug'i bilan adsorbsiyalanish izotermasi

1-rasmdagi DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasini n-geptan molekulasini adsorbsiyalanish izotermasidan [9] foydalanib Lengmyur bo'yicha adsorbentni solishtirma sirti, g'ovaklarning umumiy hajmi va radiusi hisoblab topildi (1-jadval).

1. G'ovaklarning umumiy hajmi ($V_s = 0.13 \text{ cm}^3/\text{g}$)

Langmuir modeli bo'yicha bu maksimal monolayer sig'imini bildiradi. Gibrid bionanokompozitsiya n-geptan molekularini adsorbsiyalashda yetarli g'ovak hajmiga ega, ammo juda yuqori sig'imga erishmaydi.

2. Solishtirma sirt maydoni ($S = 157 \text{ m}^2/\text{g}$)

Bu Lengmyur nuqtai nazarida monolayer yuzasini bildiradi. Ushbu qiymat n-geptan molekulari uchun o'rtacha, ya'ni adsorbent yuzasi molekularni samarali qoplashi mumkin. DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasi n-geptan monolayer adsorbsiyasiga mos va adsorbsiya samaradorligi yetarli.

1-jadval

DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasini 303 K da n-geptan molekulasini bilan adsorbsiyalanish izotermasidan hisoblab topilgan Lengmyur parametrlari

Lengmyur parametrlari	G'ovaklarning umumiy hajmi (V_s), sm ³ /g	Solishtirma sirt yuzasi (S_L), m ² /g	O'rtacha g'ovak radiusi (r), nm
n-geptan	0.131	157	1.66

3. G'ovak radiusi ($r = 1.66 \text{ nm}$)

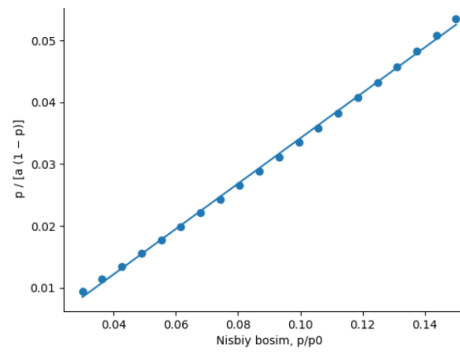
Radius mikrog'ovaklar diapazoniga kiradi (<2 nm).

Adsorbat n-geptan molekulasini ~0.43 nm bo'lgani uchun, g'ovak ichiga osongina kirib, yuzani to'liq qoplay oladi.

Ma'lumki, Lengmyurning nazariyasi monomolekulyar adsorbsiyalanish jarayonini ifodalaydi. Lengmyur modeli fizik va kimyoviy adsorbsiyalanish jarayonlarini ham o'ziga xatolik bilan yaxshi natijalar beradi. Bundan tashqari Lengmyur o'zining formulasini tekis sirtli (gomogen) adsorbentlarga adsorbat molekularining yutilishi misolida tekshirib ko'rdi. Lekin bu nazariya adsorbentlarning ko'p qatlamli va geterogen yuzalarda sodir bo'ladigan adsorbsiyalanishni tushuntirib bera olmaydi. Bunga BET modeli qo'llaniladi, BET modeli adsorbentning ko'p qatlamli gaz adsorbsiyasini hisobga olib, monolayerdan ko'p qatlamli qoplamalar hosil bo'lishini va yuzaning geterogenligini tavsiflashga asoslangan. DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasini n-geptan molekulasini adsorbsiyalanish izotermasidan (2-rasm) foydalanib BET bo'yicha adsorbentni solishtirma sirt yuzasi, BET konstantasi va radiusi hisoblab topildi (2-jadval).

1. BET konstantasi $C = 118$

BET (C) konstantasi adsorbent sirtining adsorbat molekulariga nisbatan energetik yaqinligini ifodalaydi. BET (C) konstantasini qiymati birinchi adsorbsion qatlamdagi adsorbsiya energiyasi bilan keyingi qatlamlar (kondensatsiya energiyasi) o'rtasidagi farq bilan bog'liq. BET (C) konstantasini katta bo'lishi g'ovakli sirtning energetik jihatdan faol ekanligini, adsorbent sirtida kuchli adsorbent-adsorbat o'zaro ta'sirlar mavjudligini va birinchi monoqatlamning aniq va barqaror shakllanishini va BET modelining ushbu tizim uchun to'g'ri qo'llanilishini ko'rsatadi. Xulosa qilib aytilish mumkinki, BET (C) konstantasini katta qiymati DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasiga n-geptanning adsorbsiyasida birinchi adsorbsion qatlam barqaror va energetik jihatdan qulay bo'lib asosan fizik adsorbsiyaga, ammo kuchaytirilgan dispersiya kuchlari hisobiga amalga oshirishini ko'rsatadi.



2-rasm. DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasining BET tenglamasi koordinatalarida n-geptan bug'i bilan adsorbsiyalanish izotermasi

2. Solishtirma sirt yuzasi ($S_{BET} = 145 \text{ m}^2/\text{g}$)

S_{BET} adsorbentning umumiy faol sirt maydonini ifodalaydi va sorbsiya sig'imi bilan bevosita bog'liq.

2-jadval

DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasini 303 K da n-geptan molekulasini bilan adsorbsiyalanish izotermasidan hisoblab topilgan BET parametrlari

BET parametrlari	BET konstantasi C	Solishtirma sirt yuzasi (S_{BET}), m^2/g	O'rtacha g'ovak radiusi (r), nm
n-geptan	118	145	1,86

DAS-kremnezem gibrid bionanokompozit uchun yuqori sirt rivojlanganligini, kremnezem komponentining strukturaviy karkas vazifasini samarali bajarayotganini ifodalaydi. Shuni ta'kidlash kerakki, sol-gel usulida olingan gibrid bionanokompozitini qutbsiz molekulada o'rganilishi adsorbentning gidrofob muhitdagi haqiqiy faol yuzasini va unda ochiq va kirish mumkin bo'lgan g'ovaklar mavjudligini, $S_{BET}=145 \text{ m}^2/\text{g}$ qiymati adsorbentning qutbsiz organik molekulalarni samarali yuta olish qobiliyatiga ega ekanligini ko'rsatadi.

3. G'ovak radiusi ($r = 1.86 \text{ nm}$)

Radius mikrog'ovaklar diapazoniga kiradi ($<2 \text{ nm}$).

Bunda $r = 1.86 \text{ nm}$ bo'lishi adsorbentning organik bug'lar va qutbsiz erituvchilarni yutish uchun optimal g'ovak strukturaga ega ekanligini ko'rsatadi.

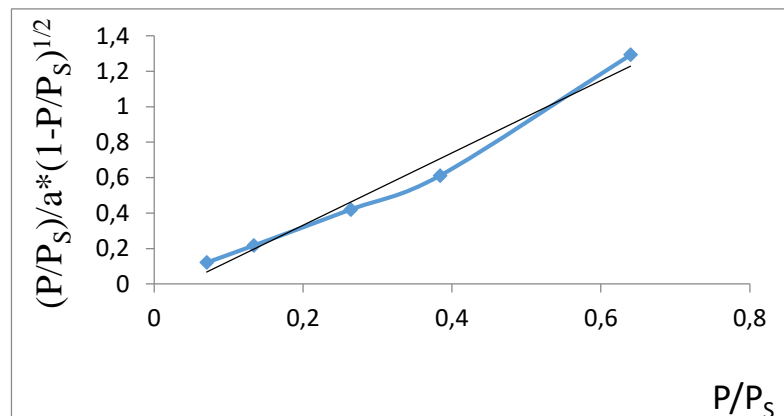
BET nazariyasidan farqli ravishda Aranovich [10] molekulalarning faqat adsorbent sirtidan emas, balki adsorbsiyalangan qatlamning istalgan joyidan ham bug'lanishi (desorbsiyalanishi) mumkinligi haqida yangi taxminni qabul qildi.

1992-yil Aranovich olingan izotermaning o'rganilgan keng intervalli nisbiy bosimlarida tajriba ma'lumotlarini qanoatlantiruvchi polimolekulyar adsorbsiyalanish tenglamasini keltirib chiqardi. BET nazariyasining asosiy taxminlarini saqlab qolish (adsorbent yuzasi tekis va bir xil; adsorbsiyalangan molekulalarning bo'ylama o'zaro ta'siri yo'q; ikkinchi va keyingi qatlamlarda adsorbsiya energiyasi bir xil) deb izohladi.

Shunday qilib, olib borilgan tadqiqotlar asosida Aranovich makrog'ovakli adsorbentlarda polimolekulyar adsorbsiyani tavsiflash uchun yangi modelni taklif etdi. 3-rasmdagi Aranovichning adsorbsiyalanish izotermasidan unga tegishli bo'lgan Aranovich parametrlari hisoblab topildi (3-jadval).

1. Aranovich konstantasi $C_A=26,4$

C_A - adsorbent va adsorbat o'rtasidagi o'zaro ta'sir intensivligini ifodalovchi konstanta bo'lib, energetik yaqinlikni aks ettiradi. $C_A=26,4$ bo'lishi, n-geptan bilan kuchli dispersiya (van der Waals) kuchlari mavjudligini, adsorbsiya jarayoni barqaror, adsorbent-adsorbat o'rtasidagi o'zaro ta'sir kuchli, qaytar fizik tabiatli adsorbsiyaga mansubligini va adsorbent sirtida energetik faol markazlar ko'pligini bildiradi. Bu qiymat BET konstantasi $C_{BET}=118$ bilan bir-birini to'ldiradi va sirtning yuqori energetik faolligini tasdiqlaydi. C_A ning yuqori qiymati adsorbsiya jarayonining energetik jihatdan qulay va selektiv ekanligini ko'rsatadi.



3-rasm. 303 K da gibrid DAS-kremnezem bionanokompozitsiyasining Aranovich tenglamasi koordinatalarida n-geptan bug'i bilan adsorbsiyalanish izotermasi

2. Solishtirma sirt yuzasi ($S_A=168 \text{ m}^2/\text{g}$)

Aranovich modelida aniqlangan solishtirma sirt yuzasi S_A adsorbentning energetik jihatdan faol sirtini ifodalaydi. Solishtirma sirt yuzasi S_A ning yuqori qiymati adsorbentda geterogen va faol yuqori adsorbsion sig'im mavjudligini tasdiqlaydi.

DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasini 303 K da n-geptan molekulasini bilan adsorbsiyalanish izotermalaridan hisoblab topilgan Aranovich parametrlari

Aranovich parametrlari	C_A	$S_A, m^2/g$	r_k, nm
n-geptan	26,4	168	10,152

3.G'ovak radiusi ($r = 10,152 nm$)

Radius mezog'ovaklar diapazoniga kiradi ($2 nm < r < 10 nm$).

Aranovich modelidagi r_k -bu material mezog'ovakli ekanligini ifodalovchi kritik radius bo'lib, adsorbentning mezog'ovak nozik strukturasi tasdiqlaydi.

Aranovichning polimolekulyar adsorbsiya modelini bir qancha termodinamik to'g'riligiga, aniqligiga hamda afzalliklariga qaramay, hozirgacha BET modelini bu modelga almashtirish jarayoni amaliy jihatdan sekin davom etmoqda.

Shunday qilib, xulosa qiladigan bo'lsak, DAS-kremnezem bionanokompozitsiyasiga n-geptan molekulasini adsorbsiyalanish izotermalari asosida Lengmyur, BET va Aranovichning izoterma model tenglamalaridan foydalanib sorbsion-struktura ko'rsatkichlari hisoblab topildi. Bunda DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitining solishtirma sirt yuzasi, radiusi hamda energetik konstantalari hisoblab topildi. DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasini n-geptan bilan adsorbsiyasida solishtirma sirt yuzasining yuqori qiymati adsorbentda energetik jihatdan geterogen, faol g'ovak sirt mavjudligini hamda adsorbentning sirt yuzasida mikro-mezog'ovaklar ya'ni ierarxik struktura mavjudligini, ularda esa asosan fizikaviy adsorbsiyalanish sodir bo'lishini ko'rsatdi.

Xulosalar

1. Diatsetatsellyuloza-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasini n-geptan molekulasini bilan olingan adsorbsiyalanish izotermasi Lengmyur, BET va Aranovichning izoterma modellari tenglamalaridan foydalanib sorbsion-struktura ko'rsatkichlari hisoblab topildi;

2. Lengmyur, BET va Aranovich izoterma modellari tenglamalaridan foydalanib topilgan adsorbentni solishtirma sirt yuzasi va model konstantalari shuni ko'rsatadiki, adsorbent **energetik jihatdan faol va** geterogen, yuqori adsorbsion sirt mavjudligini ko'rsatdi;

3. DAS-kremnezem gibrid bionanokompozitsiyasiga n-geptan molekulasining adsorbsiyasidan, adsorbentning sirt yuzasida mikro-mezog'ovaklar ya'ni ierarxik struktura mavjudligini, ularda esa asosan fizikaviy adsorbsiyalanish sodir bo'lishi aniqlandi.

ADABIYOTLAR

- Thommes, M., et al. (2015). Physisorption of gases, with special reference to the evaluation of surface area and pore size distribution. *Pure and Applied Chemistry*, 87(9–10), 1051–1069.
- Grigoriy I. Aranovich and Marc d. Donohue. (1995). Adsorption isotherms for microporous adsorbents. *Carbon Vol. 33, No. 10*, pp. 1369-1375.
- Fadeev, A.Y., Kiseleva, N.V., & Shlyapov, R.M. (2014). Adsorption of nonpolar molecules on mesoporous silica: benzene and n-hexane as probes of surface properties. *Microporous and Mesoporous Materials*, 196, 123–131.
- Al-Mutairi, N., Al-Enizi, A. M., Shaikh, S. F., & Alotaibi, F. (2024). Green synthesis of cellulose-silica nanocomposites via sol-gel method for environmental applications. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 12(1), 111234.
- Ahmed Salama. Polysaccharides-silica hybrid materials: New perspectives for sustainable raw materials // *Journal of Carbohydrate Chemistry*. -2016. -V.35(3). -P. 131-149.
- A. Yarkulov, B. Umarov, F. Rakhmatkarieva, N. Kattaev, Kh. Akbarov, E. Berdimurodov. Diacetate Cellulose-Silicon Bionanocomposite Adsorbent for recovery of Heavy Metal ions and Benzene Vapours: An Experimental and Theoretical Investigation// *Biointerface Research in Applied Chemistry- Open-Access Journal (ISSN: 2069-5837)*. –2022, –V. 12(3), – P. 2862-2880.
- Akhror Yarkulov, Mirazim Sobitov, Bakhrom Umarov, Feruza Rakhmatkarieva, Bakhtiyor Sagdullaev, Khamdam Akbarov. Thermodynamics of adsorption of heptane molecules by hybrid bionanocomposite diacetatecellulose-silica. *Problems in the Textile and Light Industry in the Context of Integration of Science and Industry and Ways to Solve Them AIP Conf. Proc.* (2024). 3045, 030062-1–030062-6.
- A.Ю. Яркуллов. Гибрид диатсетатселлюлоза-кремнезем бинаноконпозитсиясига n-гептaн молекуласининг адсорбсияланисини турли хил адсорбсион моделлар билан тахлили. *Namangan Davlat Universiteti Ilmiy axborotnomasi*. Namangan. 2025. 6-сон. B.102-106.
- A.Ю. Яркуллов. Гибрид диатсетатселлюлоза-кремнезем бинаноконпозитсиясига n-гептaн молекуласининг адсорбсияланиси. *O'zMU xabarlari*. Toshkent. 2024 3/1 son. B. 475-479.
- Толмачев А.М. Описание адсорбционных равновесий. Сорбционные и хроматографические процессы. 2009. Т.9. Вып.1. С. 5-32.