

3. Kurbanov A.I., B.A. Nosirova., Zokirov S., Sirlibaev T.S. Condensation of 2-methyl-5-ethynylpyridine with hexin-1-ol-3. Mater. Int. Conf. «III All-Union. Conf. by chemical reagents» Ashgabat. 1989.V. 3.P. 60.
4. Kurbanov A.I., Nosirova B.A. Condensation of 2-methyl-5-ethynylpyridine with 4-methyl-1-pentin-3-ol. Mater. Int. conf «I All-Union. Conf. in theoretical organic chemistry» Volgograd. 1991. P. 386. (in Russian).
5. Kurbanov A.I., Nosirova B.A. Oxidative condensation of 2-methyl-5-ethynylpyridine with pentin-1-ol-3. "Research in the field of organic chemistry and bioorganic chemistry" Collection of scientific papers. Tashkent State University of Tashkent. 1992. P. 34.
6. Ikramov A., Khalikova S.J., Ikramova Sh.A. Synthesis of pyridine bases based on acetylene alcohols. *Chemistry and Chem. Technology*. 2018. No. 3. P. 37-40.
7. Ikramov A., Khalikova S.J., Musulmanov N.Kh., Kadirov Kh.I., D.A. Handamov. Heterogeneous-catalytic synthesis of pyridine bases from acetylene, dimethyl ketone and ammonia. *Chemistry and Chem. Technology*. 2017. No. 1. P. 23-26.
8. Kadirov Kh.I., Akramov D.A., Turabzhanov S.M., Ikramov A. Catalytic synthesis of alkylpyridines. *Chemistry and Chem. Technology*. 2014. No. 2. P. 19-22.
9. Turabzhanov S.M., Ikramov A., Kadirov Kh.I., Ruziev D.U., B.B. Gofurov. Some aspects of the selection of catalysts for heterophasic addition of HX molecules to acetylene. Int. Conf. «Catalytic processes of oil refining, petrochemicals and ecology» Tashkent. 2013. P. 29-30.
10. Shaker Y. Recent trends in the chemistry of pyridine N-oxides *Arch. Org. Chem.* 2001. P. 242-268. doi.org/10.3998/ark.5550190.0002.116.
11. Nivedita Chaudhri., Ray J. Butcher B. and Muniappan Sankar. Synthesis and structural, photophysical, electrochemical redox and axial ligation properties of highly electron deficient perchlorometalloporphyrins and selective CN sensing by Co(II) complexes. *New J. Chem.* 2018. V. 42. P. 8190-8199. DOI: 10.1039/c7nj04418f.
12. Ryzhakhov A.V., Alekseeva O.O., Rodina L.L. New trends in the chemistry of molecular complexes of heteroaromatic N-oxides. *Bull. St. Peter. University*. 2009. Ser. 4. Iss.1. P. 68-76.
13. Ryzakhov F.V., Fndreev V.P. Coordination of pyridine N-oxides with cations of alkali and alkaline earth metals. *J. Gen. Chem.* 2005.V. 75. No. 1. P. 133-136.
14. Collado D., Perez Inestrosa E., Suau R., Desvergne J.P., Bouas Laurent H. A new type of metal cation dual channel fluorosensor. *Jour. Org. Lett.* 2002. V. 4. N. 5. P. 855-858.
15. Subramania Ranganathan., Ch. Chandrashekhara Rao., Suvarchala Devi Vudayagiri., Ybrd Rajesh and B. Jagadeesh. Solubilization of silica: Synthesis, characterization and study of penta-coordinated pyridine N-oxide silicon complexes. *J. Chem. Sci.* Vol. 116. No. 3. 2004. P. 169-174.

УДК: 541.183:544.7

DOI: [https://doi.org/10.56122/..v2i2%20\(26\).487](https://doi.org/10.56122/..v2i2%20(26).487)

ОЧИСТКА ВОДЫ ОТ ИОНОВ ХРОМА С ПОМОЩЬЮ БЕНТОНИТОВ И ТЕРМОДИНАМИКА АДСОРБЦИИ

Хандамов Даврон Абдикодирович - Доктор химических наук, профессор

Ташкентский химико-технологический институт, г. Ташкент, Узбекистан

ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3370-1877>, davron.khandamov@gmail.com

Нуртаев Уринбай Нишанбекович - кандидат педагогических наук, профессор.

Чирчикского филиала Южно-Казахстанского университета имени М. Ауэзова

ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3370-2033>, urinbaynurtayev@gmail.com

Дониеров Сарвар Алланазович - кандидат химических наук, старший преподаватель

Ташкентский химико-технологический институт, г. Ташкент, Узбекистан

ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3370-1866>

Бекмирзаев Акбарбек Шухратович - кандидат химических наук, старший преподаватель
Ташкентский химико-технологический институт, г. Ташкент, Узбекистан
ORCID: <https://orcid.org/0009-0005-4339-9060>

Зиядуллаев Анвар Эгамбердиевич - доктор технических наук, доцент, заведующий
кафедрой «Технология основ органического синтеза» Ташкентский химико-
технологический институт, г. Ташкент, Узбекистан
ORCID: <https://orcid.org/0009-0005-4339-1080>

АННОТАЦИЯ

В данной статье изучена эффективность удаления ионов хрома из водных растворов с использованием природного бентонита и его образцов, активированных серной кислотой. По данным изотерм адсорбции, полученных при различных температурах (288–318 К), установлено, что максимальная эффективность адсорбции на всех адсорбентах достигается при температуре 298 К. Для модели Ленгмюра коэффициент детерминации R^2 оказался высоким для всех трёх адсорбентов (DB: 0,996; DB25: 0,997; DB15: 0,998), что указывает на хорошее соответствие экспериментальных данных данной модели. Значения $1/n$ и n в модели Фрейндлиха для DB, DB25 и DB15 составляют соответственно: 1,7; 1,81 и 2,03. Так как $n > 1$, это подтверждает благоприятный характер адсорбционного процесса. Согласно модели Дубинина–Радускевича, наибольшая энергия адсорбции ($E = 191,04$ кДж/моль) наблюдалась у DB15, что свидетельствует о наличии также химической адсорбции.

Ключевые слова: бентонит, кислотная активация, изотерма адсорбции, термодинамика, энтальпия, энтропия, энергия Гиббса.

WATER PURIFICATION FROM CHROMIUM IONS USING BENTONITES AND ADSORPTION THERMODYNAMICS

Khandamov Davron Abdikodirovich - Doctor of Chemical Sciences, Professor
Tashkent Institute of Chemical Technology, Tashkent, Uzbekistan
ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3370-1877>, davron.khandamov@gmail.com

Nurtayev Urinbay Nishanbekovich -Candidate of Pedagogical Sciences, Professor, Chirchik
Branch of M. Auezov South Kazakhstan University
ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3370-2033>, urinbaynurtayev@gmail.com

Doniyorov Sarvar Allanazarovich - Candidate of Chemical Sciences, Senior Lecturer
Tashkent Institute of Chemical Technology, Tashkent, Uzbekistan
ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3370-1866>

Bekmirzaev Akbarbek Shukhratovich - Candidate of Chemical Sciences, Senior Lecturer
Tashkent Institute of Chemical Technology, Tashkent, Uzbekistan
ORCID: <https://orcid.org/0009-0005-4339-9060>

Ziyadullaev Anvar Egamberdievich - Doctor of Technical Sciences, Associate Professor,
Head of the Department of "Technology of the Fundamentals of Organic Synthesis"
Tashkent Institute of Chemical Technology, Tashkent, Uzbekistan
ORCID: <https://orcid.org/0009-0005-4339-1080>

ABSTRACT

This article examines the effectiveness of chromium ion removal from aqueous solutions using natural bentonite and its samples activated with sulfuric acid. According to the adsorption isotherms obtained at different temperatures (288–318 K), it was found that the maximum adsorption efficiency on all adsorbents is achieved at 298 K. For the Langmuir model, the coefficient of determination R^2 was high for all three adsorbents (DB: 0.996; DB25: 0.997; DB15: 0.998), indicating a good fit of the experimental data to this model. The values of $1/n$ and n in the Freundlich model for DB, DB25, and DB15 were 1.7, 1.81, and 2.03, respectively. Since $n > 1$, this confirms the favorable nature of the adsorption process. According to the Dubinin–Radushkevich

model, the highest adsorption energy ($E = 191.04 \text{ kJ/mol}$) was observed for DB15, indicating the presence of chemical adsorption as well.

Key words: bentonite, acid activation, adsorption isotherm, thermodynamics, enthalpy, entropy, Gibbs energy.

Введение. В настоящее время получение активированных глинистых адсорбентов на основе местных бентонитов и их широкое применение для очистки сточных вод от вредных ионов представляет собой важную научно-практическую задачу [1]. В природе ионы хрома попадают в водную среду в результате химического загрязнения, связанного с промышленным производством. Эти ионы существенно снижают качество воды и при попадании в питьевую воду представляют серьёзную угрозу для здоровья человека [2]. Их токсичность оказывает негативное воздействие не только на функции органов человека, но также обладает канцерогенными свойствами. Поэтому крайне важно разрабатывать эффективные методы очистки воды до безопасного состояния [3]. Изучение адсорбционных свойств местных бентонитов и повышение их активности с помощью активации открывает возможности для создания недорогих и эффективных адсорбентов. Использование активированных местных бентонитов в очистке водных ресурсов имеет большое научное и прикладное значение в области коллоидной химии [4]. На международном уровне проводятся различные научные исследования по созданию адсорбентов на основе активированной глины из местного бентонитового сырья [5, 6].

Методы и материалы исследования. Модельные растворы ионов хрома были приготовлены путём растворения $2,83 \text{ г K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ в 1000 мл дистиллированной воды для получения необходимой концентрации. Во всех экспериментах по адсорбции использовались конические колбы объёмом 100 мл , содержащие адсорбенты в количестве $0,05$; $0,1$; $0,2$; $0,25$ и $0,3 \text{ г/л}$. Процессы проводились на шейкере модели GFL 3033 при постоянной скорости перемешивания 150 об/мин . Измерения pH растворов проводились с использованием pH-метра модели Orion 900S2. Корректировка pH осуществлялась с помощью растворов NaOH и HCl с концентрацией $0,1 \text{ моль/л}$. Концентрация ионов хрома в растворе определялась спектрофотометрическим методом с применением дифенилкарбазидного реактива ($0,1 \text{ г}$ дифенилкарбазида, растворённого в 10 мл ацетона) и $0,2 \text{ мл}$ концентрированной серной кислоты. Суть метода заключается в образовании окрашенного комплекса между ионами хрома (VI) и 1,5-дифенилкарбазидом. Измерения спектров проводились при длине волны 540 нм с использованием УФ-спектрофотометра Shimadzu UV-1800 [7].

Для определения влияния температуры на процесс адсорбции были проведены эксперименты при различных температурах в диапазоне $288\text{--}318 \text{ К}$. Эксперименты проводились с различными начальными концентрациями Cr(VI) от $0,05$ до $0,5 \text{ мг/л}$. Во всех опытах использовались следующие условия: масса адсорбента — $1,0 \text{ г}$, pH среды — $7,0$, время взаимодействия адсорбента с адсорбатом — 150 минут , скорость перемешивания — 150 об/мин . Изотермы адсорбции ионов хрома в воде с использованием кислотно-активированных бентонитов представлены на рисунке 1.

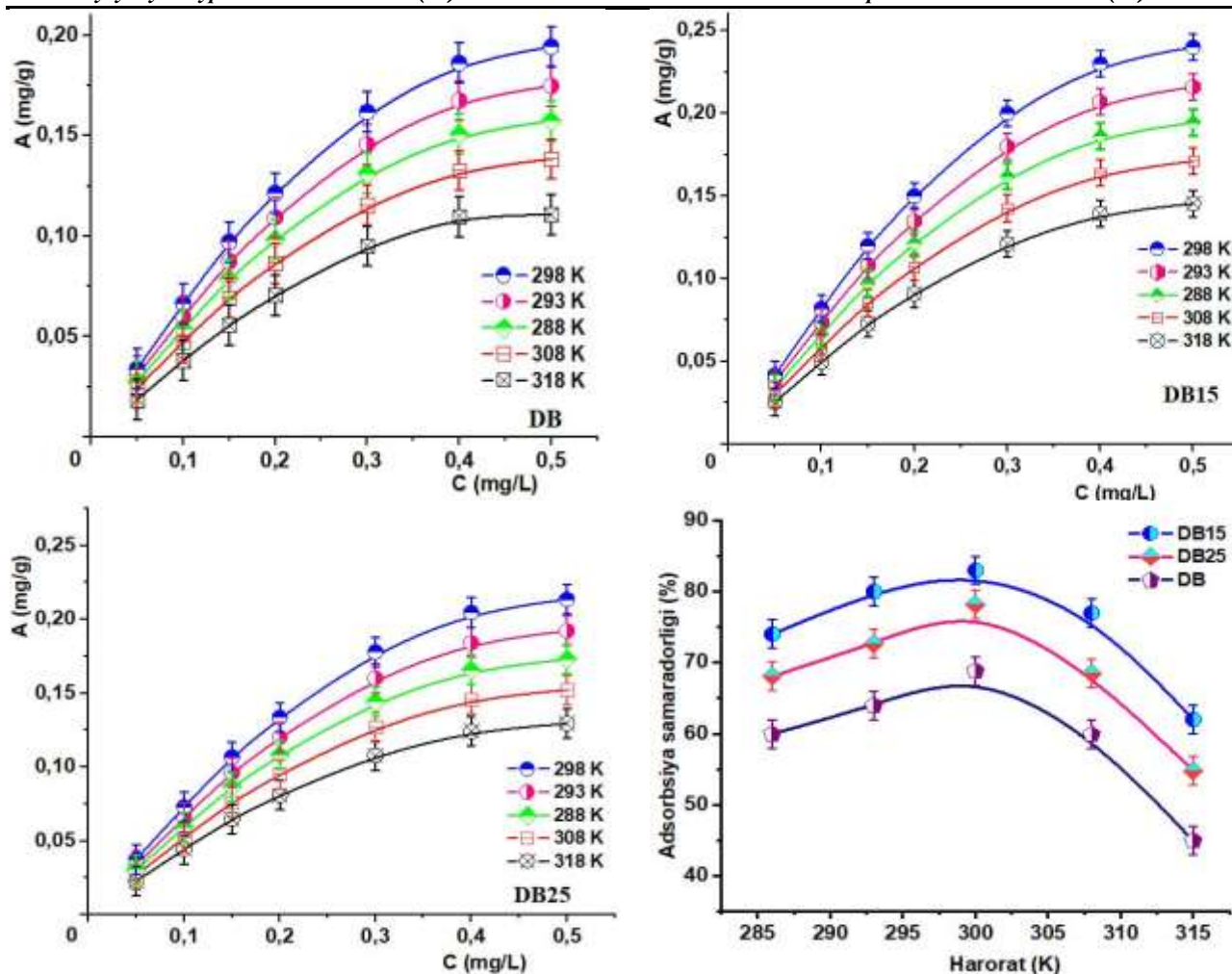


Рисунок 1. Изотермы адсорбции ионов хрома на природном и кислотно-активированном бентоните при различных температурах

Как видно из изотерм адсорбции, с повышением температуры в интервале 288–298 К наблюдается увеличение количества ионов хрома, адсорбированных на адсорбенты. По величине адсорбции ионов хрома на бентонитах можно расположить образцы в следующем ряду по адсорбционной активности: DB15 > DB25 > DB. Для анализа изотерм адсорбции ионов хрома на кислотно-активированных бентонитах были использованы модели адсорбции Ленгмюра, Фрейндлиха, Темкина и Дубинина–Радушкевича (D–R). Применение моделей Ленгмюра, Фрейндлиха, Темкина и Дубинина–Радушкевича (D–R) для анализа адсорбции ионов хрома на кислотно-активированных бентонитах позволяет лучше охарактеризовать физико-химические механизмы адсорбции и сам процесс адсорбции. Графики изотерм Ленгмюра, Фрейндлиха, Темкина и Дубинина–Радушкевича для адсорбции ионов хрома на адсорбентах DB, DB15 и DB25 представлены на рисунке 2.

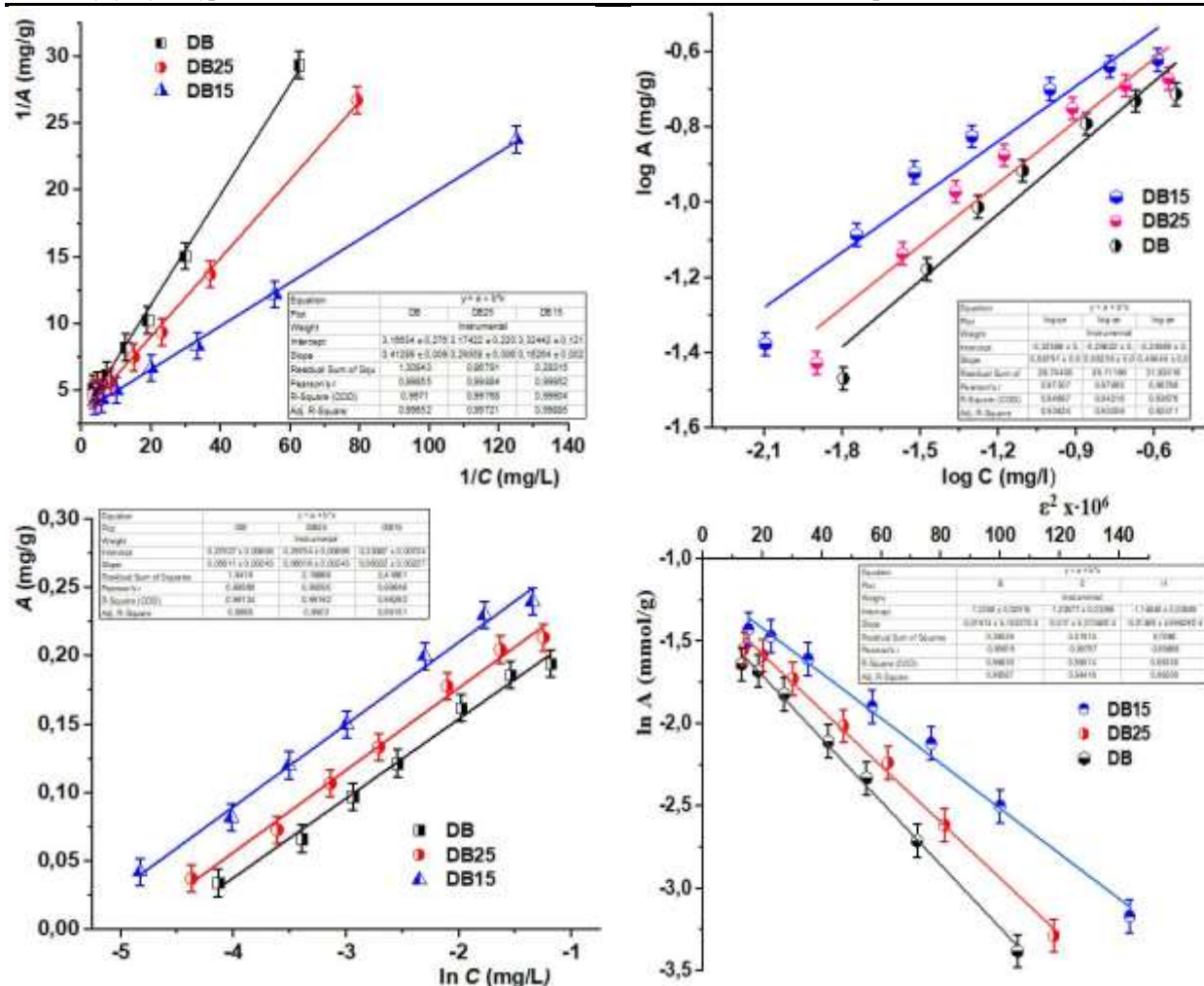


Рисунок 2. Изотермы адсорбции ионов хрома на адсорбентах DB, DB15 и DB25 по моделям Ленгмюра, Фрейндлиха, Темкина и Дубинина–Радужкевича

На приведённом рисунке показано, что применение модели Ленгмюра для адсорбции ионов хрома на адсорбентах DB, DB15 и DB25 позволяет определить характер взаимодействия между адсорбированными ионами хрома и адсорбентами, а также установить их максимальную адсорбционную ёмкость. Из графика модели Фрейндлиха видно, что адсорбционная ёмкость увеличивается с ростом концентрации. Адсорбенты DB, DB15 и DB25 демонстрируют различную интенсивность адсорбции в зависимости от констант Фрейндлиха (K) и показателя интенсивности адсорбции (n). Данные по адсорбции ионов хрома из водного раствора на кислотно-активированных адсорбентах DB, DB15 и DB25 в соответствии с моделями Ленгмюра, Фрейндлиха, Темкина и Дубинина–Радужкевича представлены в таблице 1.

Таблица 1

Показатели адсорбции ионов хрома на кислотно-активированных бентонитах DB, DB15 и DB25 по моделям Ленгмюра, Фрейндлиха, Темкина и Дубинина–Радужкевича

Модели изотерм	Показатели	Адсорбенты		
		DB	DB25	DB15
Лэнгмюра	q_{max} (mg/g)	0,305	0,315	0,325
	K_L (L/mg)	7,668	10,812	20,440
	R_L	0,025	0,018	0,009
	R^2	0,996	0,997	0,998
Фрейндлиха	K_F (mg/g)	2,116	1,932	1,772
	$1/n$	0,588	0,552	0,365
	n	1,700	1,81061	2,039152

	R^2	0,977	0,942	0,936
Темкина	B_T (J/mol)	0,058	0,060	0,060
	K_T (L/mg)	104,690	139,421	242,507
	R^2	0,989	0,990	0,991
Дубинина– Радужкевича	q_m (mg/g)	0,265	0,289	0,317
	β_d (mol ² /kJ ²)	$1,91 \cdot 10^{-5}$	$1,7 \cdot 10^{-5}$	$1,37 \cdot 10^{-5}$
	E (kJ/mol)	161,796	171,498	191,040
	R^2	0,995	0,994	0,992

В таблице приведены параметры моделей Ленгмюра, Фрейндлиха, Темкина и Дубинина–Радужкевича для адсорбентов DB (бентонит Дехканабадский), DB25 (бентонит, обработанный 25% серной кислотой) и DB15 (бентонит, обработанный 15% серной кислотой). Максимальная адсорбционная емкость модели Ленгмюра q_{max} (мг/г) составляет: для DB — 0,315 мг/г, для DB25 — 0,305 мг/г, для DB15 — 0,325 мг/г. Значение K_L (л/мг), отражающее склонность к адсорбции, наибольшее у DB15 (20,440 л/мг), что указывает на высокую способность данного адсорбента к связыванию ионов хрома. Коэффициенты детерминации R^2 модели Ленгмюра высоки для всех трёх адсорбентов: DB — 0,996; DB25 — 0,997; DB15 — 0,998, что говорит о хорошем соответствии модели экспериментальным данным.

По модели Темкина параметр B_T для всех трёх адсорбентов составил: DB — 0,058; DB25 — 0,060; DB15 — 0,060. Значения R^2 по данной модели также высоки: DB — 0,989; DB25 — 0,990; DB15 — 0,991, что указывает на хорошее соответствие модели экспериментальным данным. По модели Дубинина–Радужкевича энергия адсорбции E (кДж/моль) наиболее высока для DB15 (191,04 кДж/моль), что свидетельствует о наличии химической адсорбции. Термодинамические параметры адсорбции имеют важное значение при анализе взаимодействия между адсорбентом и адсорбатом, а также эффективности самого процесса. Для описания термодинамических характеристик адсорбции ионов хрома на адсорбентах DB, DB15 и DB25 использовался линейный график зависимости $\ln K_L$ от $1/T$ (рисунок 3).

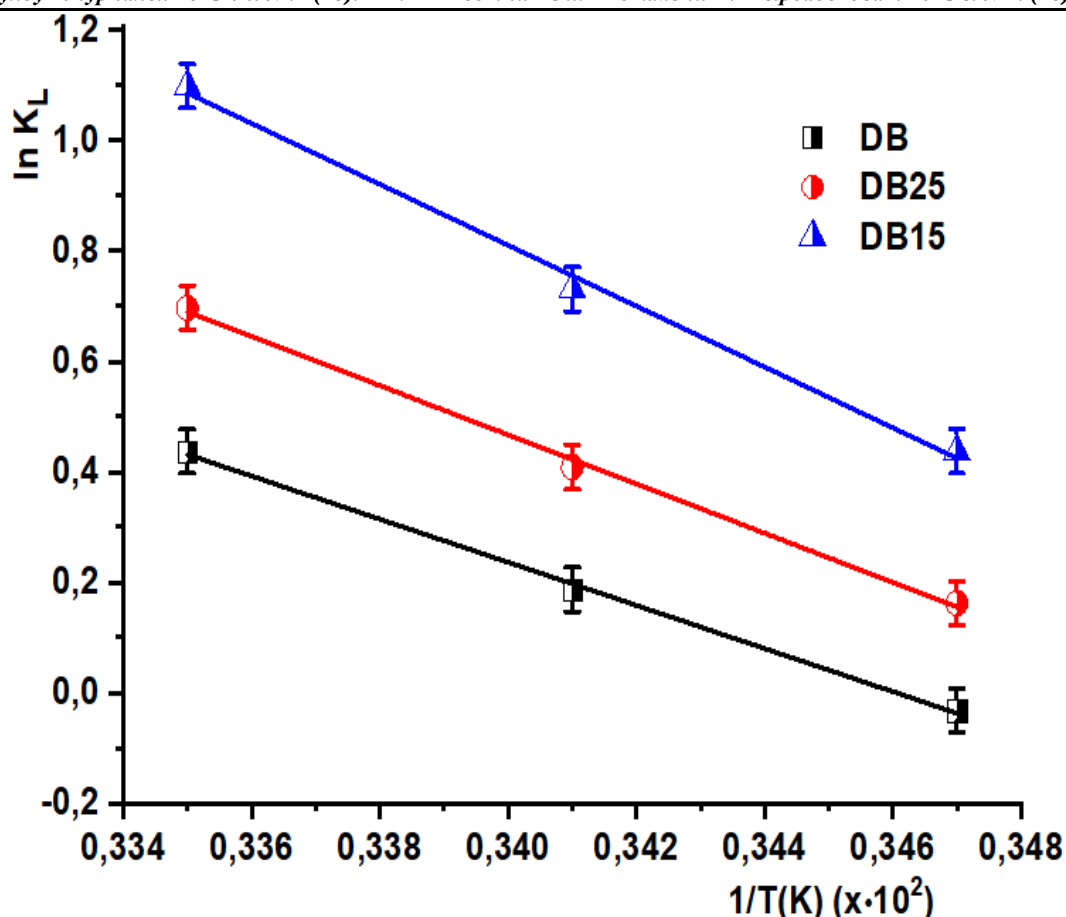


Рисунок 3. График зависимости $1/T$ от $\ln K_L$ адсорбции ионов хрома на адсорбентах DB, DB15 и DB25

Численные значения свободной энергии Гиббса (ΔG°), энтальпии адсорбции (ΔH°) и энтропии адсорбции (ΔS°), рассчитанные из графика зависимости $\ln K_L$ от $1/T$, представлены в таблице 2.

Таблица 2
Термодинамические параметры адсорбции ионов хрома на бентонитах DB, DB25 и DB15

Адсорбент ы	Температура а (K)	K_L	ΔG° (кДж/моль)	ΔH° (кДж/моль)	ΔS° (кДж/моль)	R^2
DB	288	0,968	-0,076	33,435	0,115	0,997
	293	1,205	-0,454			
	298	1,547	-1,082			
DB25	288	1,176	-0,388	38,121	0,133	0,996
	293	1,504	-0,995			
	298	2,007	-1,726			
DB15	288	1,547	-1,045	47,187	0,167	0,994
	293	2,076	-1,780			
	298	3,001	-2,721			

Значения ΔG° в процессе адсорбции указывают на физическую или химическую природу процесса. Результаты экспериментов показывают, что значения свободной энергии Гиббса подтверждают самопроизвольность процесса адсорбции. У адсорбента DB значения ΔG° снижаются с увеличением температуры от $-0,076$ до $-1,082$ кДж/моль, у DB25 — от $-0,388$ до $-1,726$ кДж/моль, а у DB15 — от $-1,045$ до $-2,721$ кДж/моль. Это свидетельствует о

том, что процесс адсорбции наиболее стабилен у DB15. Отрицательное значение свободной энергии Гиббса при адсорбции указывает на самопроизвольность данного процесса. Если рассматривать энтальпию адсорбции (ΔH°), то положительное значение этой величины свидетельствует об эндотермическом характере процесса (т.е. он требует поглощения тепла).

Выводы. В экспериментах были получены следующие значения: для DB — $\Delta H^\circ = 33,435$ кДж/моль, для DB25 — $38,121$ кДж/моль, для DB15 — $47,187$ кДж/моль. Положительное значение энтропии адсорбции (ΔS°) указывает на увеличение беспорядка в системе адсорбент–адсорбат. Значения: для DB — $\Delta S^\circ = 0,115$ кДж/моль·К, для DB25 — $\Delta S^\circ = 0,133$ кДж/моль·К, для DB15 — $\Delta S^\circ = 0,167$ кДж/моль·К, что свидетельствует о возрастании свободы и подвижности молекул в процессе адсорбции.

В заключение можно сказать, что модель адсорбции Ленгмюра наилучшим образом описывает экспериментальные данные для всех адсорбентов DB, DB25 и DB15, поскольку имеет высокие значения коэффициента детерминации R^2 . Среди всех исследуемых адсорбентов бентонит DB15 показал наивысшую эффективность по всем моделям адсорбции. На основании проанализированных параметров можно сделать вывод о физико-химической природе процесса. Для всех адсорбентов процесс адсорбции характеризуется как эндотермический и сопровождается увеличением степени беспорядка в системе.

Список литературы

1. Бейшенкулова Д.А., Токтокожоева Т.К., Абылмейизова Б.У., Дегембаева Н.К. Использование местного сырья для очистки сточных вод. Наука, новые технологии и инновации Кыргызстана. 2022. №. 9. С. 101-104.
2. Гаев А.Я., Куделина И.В., Леонтьева Т.В. Водохозяйственные проблемы вододефицитных территорий на примере южного урала. Наука, новые технологии и инновации Кыргызстана. 2019. №. 4. С. 218-222.
3. Хаджамбердиев И., Прохоренко В., Тухватшин Р. Водно-экологические риски в центральной азии. наука, новые технологии и инновации Кыргызстана. 2019. №. 4. С. 277-280.
4. Khandamov D.A., Kurniawan T.A., Bekmirzayev A.SH., Eshmetov R.J., Nurullaev Sh.P., Babakhanova Z., Batool F., AbdulKareem-A.G. Cu^{2+} removal from synthetic wastewater using amine-modified bentonites: Kinetics and thermodynamic study based on multilinear regression (MLR) modeling // Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers. 2024, 105481. P.1-12. doi.org/10.1016/j.jtice.2024.105481.
5. Азембаев А.А. Валидация системы получения очищенной воды в опытном производстве по требованиям международного стандарта gmp. Наука, новые технологии и инновации Кыргызстана. 2018. №. 11. С. 29-31.
6. O'smir I., Abdullayev M., Ahmedov K. Thermodynamic study of phosphate ions removal from wastewater using bentonite // Journal of Environmental Management. 2019. №245, P.146-154.
7. Дониёров С.А., Бекмирзаев А.Ш., Хандамова Д.К., Холикова С.Дж., Хандамов Д.А. Изучение изотерм и кинетики адсорбции фосфат-ионов в воде активированными бентонитами // Universum: Химия и биология: Научный журнал. Москва, 2024. №12 (126) С.27-35.

УДК 541.183:544.725

АНАЛИЗ ТЕРМИЧЕСКОГО СОПРОТИВЛЕНИЯ МОДИФИЦИРОВАННЫХ АДСОРБЕНТОВ