

Tulaganov Sardor Anvarovich, Iskandarov Shukhrat Choriyevich
U.A. Arifov Institute of Ion-Plasma and Laser Technologies
Senior Researcher
E-mail: tulaganov@iplt.uz

Тулаганов Сардор Анварович, Искандаров Шухрат Чориевич
Институт ионно-плазменных и лазерных технологий им. У.А. Арифова
Старший научный сотрудник
E-mail: tulaganov@iplt.uz

Tulaganov Sardor Anvarovich, Iskandarov Shuxrat Choriyevich
U.A. Arifov nomidagi ion-plazma va lazer texnologiyalari instituti
katta ilmiy hodim
tulaganov@iplt.uz

PROPERTIES OF HIGHLY DISPERSED AMORPHOUS SiO₂

S.A. Tulaganov, Sh.Ch. Iskandarov

Abstract. At present, highly dispersed amorphous silicon dioxide (SiO₂) is widely used as an important functional material in adsorption, catalysis, composite materials, and environmental technologies. However, conventional industrial technologies based on the production of pyrogenic SiO₂ are characterized by high energy consumption, the use of expensive raw materials, and a significant environmental burden. Therefore, the development of resource-efficient and environmentally safe alternative technologies based on industrial wastes and technogenic raw materials represents a pressing scientific and practical challenge.

In this study, a fluoroammonium method for synthesizing highly dispersed amorphous SiO₂ based on technogenic wastes of the metallurgical industry—copper smelting slags and microsilica obtained from ferrosilicon production—is proposed. The process involves the conversion of SiO₂ into ammonium hexafluorosilicate ((NH₄)₂SiF₆, GFSA) using ammonium fluoride, followed by hydrolysis in the presence of ammonium hydroxide. This technology enables the regeneration of reagents, particularly ammonium fluoride, thereby enhancing the economic and environmental efficiency of the process.

The structural and physicochemical properties of the synthesized SiO₂ samples were investigated using SEM/TEM, BET surface area analysis, FTIR spectroscopy, and adsorption experiments. The results demonstrated that SiO₂ possesses an amorphous structure, spherical morphology, and a well-developed specific surface area. Adsorption activity was evaluated using methylene blue and Congo red dyes as model adsorbates. Comparative analysis confirmed that, in some cases, SiO₂ obtained from technogenic raw materials exhibits properties comparable to or superior to those of A-60 grade pyrogenic SiO₂.

Keywords: *highly dispersed amorphous SiO₂, fluoroammonium method, technogenic raw materials, adsorption properties, comparative analysis with pyrogenic SiO₂.*

СВОЙСТВА ВЫСОКОДИСПЕРСНОГО АМОРФНОГО SiO_2

С.А. Тулаганов, Ш.Ч. Искандаров

Аннотация. В настоящее время высокодисперсный аморфный диоксид кремния (SiO_2) широко применяется в адсорбции, катализе, композиционных материалах и экологических технологиях как важный функциональный материал. Однако традиционные промышленные технологии, основанные на производстве пирогенного SiO_2 , характеризуются высоким энергопотреблением, использованием дорогостоящего сырья и значительной экологической нагрузкой. В связи с этим разработка ресурсосберегающих и экологически безопасных альтернативных технологий на основе промышленных отходов и техногенного сырья является актуальной научно-практической задачей.

В данной работе предложен фторааммонийный метод синтеза высокодисперсного аморфного SiO_2 на основе техногенных отходов металлургической промышленности шлаков медеплавильного производства и микрокремнезёма, получаемого при производстве ферросилиция. Процесс включает превращение SiO_2 с использованием фторида аммония в гексафторсиликат аммония $((\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6, \text{ГФСА})$ с последующим гидролизом в присутствии гидроксида аммония. Данная технология обеспечивает регенерацию реагентов, в частности фторида аммония, что повышает экономическую и экологическую эффективность процесса.

Структурные и физико-химические свойства синтезированных образцов SiO_2 исследованы методами SEM/TEM, BET, FTIR и адсорбционных экспериментов. Полученные результаты показали, что SiO_2 обладает аморфной структурой, сферической морфологией и развитой удельной поверхностью. Адсорбционная активность оценивалась на примере метиленового синего и конго красного. Сравнительный анализ подтвердил, что SiO_2 , полученный из техногенного сырья, в ряде случаев обладает свойствами, близкими или превосходящими характеристики пирогенного SiO_2 марки А-60.

Ключевые слова: высокодисперсный аморфный SiO_2 , фторааммонийный метод, техногенное сырьё, адсорбционные свойства, сравнительный анализ с пирогенным SiO_2 .

YUQORI DISPERSLI AMORF SiO_2 XUSUSIYATLARI

S.A. Tulaganov, Sh.Ch. Iskandarov

Annotatsiya. Hozirgi kunda yuqori dispersli amorf kremniy dioksidi (SiO_2) adsorbsiya, kataliz, kompozit materiallar va ekologik texnologiyalarda muhim funksional material sifatida keng qo'llanilmoqda. Biroq pirogen SiO_2 ishlab chiqarishga asoslangan an'anaviy sanoat texnologiyalari yuqori energiya sarfi, qimmat xomashyo va sezilarli ekologik yuklama bilan tavsiflanadi. Shu sababli sanoat chiqindilari va texnogen xomashyolardan foydalanishga asoslangan, resurs-

tejamkor va ekologik xavfsiz muqobil texnologiyalarni ishlab chiqish dolzarb ilmiy-amaliy vazifa hisoblanadi.

Mazkur tadqiqotda metallurgiya sanoati texnogen chiqindilari mis eritish shlaklari hamda ferrosilitsiy ishlab chiqarishidan olingan mikrokremnezem asosida yuqori dispersli amorf SiO_2 ni sintez qilishning ftorammoniy usuli taklif etildi. Jarayon SiO_2 ning ammoniy ftoridi yordamida geksaflorsilikat ammoniy $((\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6, \text{GFSA})$ ga aylantirilishi va keyinchalik ammoniy gidroksidi ishtirokida gidrolizlanishini o'z ichiga oladi. Ushbu texnologiya reaktivlarning, xususan ammoniy ftoridning qayta tiklanishini ta'minlab, jarayonning iqtisodiy va ekologik samaradorligini oshiradi.

Sintez qilingan SiO_2 namunalarining strukturaviy va fizik-kimyoviy xususiyatlari SEM/TEM, BET, FTIR hamda adsorbsion tajribalar yordamida o'rganildi. Natijalar SiO_2 ning amorf tuzilishga, sferik morfologiyaga va rivojlangan sirt maydoniga ega ekanligini ko'rsatdi. Adsorbsion faollik metilen ko'k va Kongo qizil bo'yoqlari misolida baholandi. Qiyosiy tahlillar texnogen xomashyodan olingan SiO_2 ayrim holatlarda A-60 markali pirogen SiO_2 ga yaqin yoki undan ustun xususiyatlarga ega ekanligini tasdiqladi.

Kalit so'zlar: yuqori dispersli amorf SiO_2 , ftorammoniy usuli, texnogen xomashyo, adsorbsion xususiyatlar, pirogen SiO_2 bilan qiyosiy tahlil.

Kirish

Yuqori dispersli amorf kremniy dioksidi (SiO_2) rivojlangan sirt maydoni, kimyoviy barqarorligi hamda sirt funksional guruhlarining xilma-xilligi tufayli zamonaviy sanoat tarmoqlarida muhim funksional material sifatida keng qo'llanilmoqda [1–4]. Xususan, yuqori dispersli SiO_2 suv va oqava muhitlarni tozalashda samarali adsorbent, kataliz jarayonlarida katalizator tashuvchisi, shuningdek polimer, rezina va qurilish materiallari asosidagi kompozitlarda mustahkamlovchi hamda modifikatsiyalovchi komponent sifatida katta amaliy ahamiyatga ega. Bundan tashqari, amorf SiO_2 ning nanoo'lchamli shakllari farmatsevtika, kosmetika va oziq-ovqat sanoatida ham qo'shimcha funksional xossalarga ega material sifatida qo'llanilmoqda [5, 6].

Hozirgi vaqtda yuqori dispersli SiO_2 asosan pirogen yoki cho'ktirish usullari orqali olinadi [2, 7]. Pirogen SiO_2 ishlab chiqarish texnologiyasi yuqori haroratlar, katta energiya sarfi hamda qimmat va ekologik jihatdan xavfli xomashyolardan foydalanish bilan tavsiflanadi. Ushbu usul natijasida yuqori tozalikka ega, sferik shaklli va nisbatan tor o'lcham taqsimotiga ega zarralar hosil bo'lishiga qaramay, jarayonning yuqori karbon izi va ekologik yuklamasi uning sanoat miqyosida barqaror qo'llanilishini cheklaydi [3, 7].

Cho'ktirish usullari suyuq fazada kremniy birikmalarining gidrolizi va keyingi cho'ktirilishiga asoslanadi [1, 2, 11]. Ushbu texnologiyalar nisbatan past haroratlarda amalga oshirilsa-da, ko'p bosqichli jarayonlar, reaktivlarning katta sarfi hamda katta hajmdagi suyuq chiqindilar hosil bo'lishi bilan ajralib turadi [6, 11]. Bundan tashqari, cho'ktirilgan SiO_2 ning strukturaviy va teksturaviy xususiyatlari jarayon parametrlariga kuchli bog'liq bo'lib, mahsulot sifatining

barqarorligini ta'minlashni murakkablashtiradi [1, 10, 15]. Ushbu omillar yuqori dispersli SiO_2 ni keng ko'lamda va iqtisodiy jihatdan samarali ishlab chiqarishni cheklovchi asosiy sabablar sifatida namoyon bo'lmoqda.

Shu munosabat bilan sanoat chiqindilari va texnogen xomashyolardan foydalanishga asoslangan, energiya va resurs tejankor, ekologik xavfsiz texnologiyalarni ishlab chiqish dolzarb ilmiy-amaliy vazifaga aylanmoqda [17]. Bunday yondashuv nafaqat yuqori dispersli amorf SiO_2 olish imkonini beradi, balki metallurgiya sanoati chiqindilarini qayta ishlash orqali atrof-muhitga tushadigan yuklamani kamaytirish va ikkilamchi xomashyo resurslaridan samarali foydalanishga xizmat qiladi. So'nggi yillarda "yashil" va muqobil texnologiyalarga asoslangan SiO_2 sintezi usullariga qiziqish ortib borayotgan bo'lsa-da, ularning ko'pchiligi xomashyo bazasining cheklanganligi yoki sanoat miqyosida joriy etishdagi murakkabliklar bilan bog'liq muammolarga duch kelmoqda [17–19].

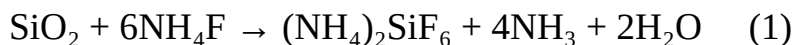
Adabiyotlar tahlili shuni ko'rsatadiki, texnogen xomashyodan olinadigan SiO_2 ning strukturaviy, sirt va adsorbsion xususiyatlarini tijorat pirogen SiO_2 bilan kompleks qiyosiy baholashga bag'ishlangan tadqiqotlar yetarli darajada tizimlashtirilmagan [6, 17]. Bu holat mazkur yo'nalishda yangi ilmiy yondashuvlarni ishlab chiqish zaruratini ko'rsatadi [25].

Mazkur tadqiqotning asosiy maqsadi metallurgiya sanoati texnogen chiqindilari va ikkilamchi xomashyolar asosida ftorammoniy texnologiyasi yordamida sintez qilingan yuqori dispersli amorf kremniy dioksidi (SiO_2) ning strukturaviy, teksturaviy va sirt xususiyatlarini kompleks baholash hamda ularni tijorat pirogen SiO_2 namunalari bilan qiyosiy tahlil qilishdan iboratdir [1, 3, 6, 17]. Tadqiqotda mis eritish shlaklari va ferrosilitsiy ishlab chiqarishidan hosil bo'ladigan mikrokremnezem boshlang'ich xomashyo sifatida tanlanib, ftorlovchi reaktiv sifatida ammoniy ftoridi (NH_4F) qo'llanildi. NH_4F ning qayta tiklanish imkoniyati ushbu texnologiyaaning resurs-tejamkorligi va ekologik samaradorligini oshiruvchi muhim omil hisoblanadi [18, 25].

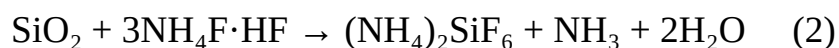
Tadqiqod metodologiyasi.

Yuqori dispersli amorf SiO_2 ni sintez qilish jarayoni ftorammoniy texnologiyasiga asoslanib, kremniy oksidining geksaforsilikat ammoniy orqali oraliq birikmaga aylanishi va keyinchalik gidrolizlanishi bosqichlarini o'z ichiga oladi [1, 6, 17]. Ushbu yondashuv SiO_2 ni selektiv ajratish, sintez jarayoni parametrlarini boshqarish hamda reaktivlarning qayta tiklanishini ta'minlash imkonini beradi [6, 18, 25]. Ftorammoniy usulining umumiy texnologik ketma-ketligi 1-rasmda sxematik tarzda keltirilgan.

Dastlabki bosqichda texnogen xomashyo tarkibidagi SiO_2 ammoniy ftoridi (NH_4F) bilan o'zaro ta'sirlashib, geksaforsilikat ammoniy ($(\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6$) hosil qiladi [1, 6]. Ftorlash jarayoni 50–200 °C harorat oralig'ida olib borilib, NH_4F miqdori SiO_2 ga nisbatan stexiometrik nisbatda tanlandi. Ushbu jarayonning kimyoviy mohiyati (1)-reaksiya orqali ifodalanadi [1, 6]:



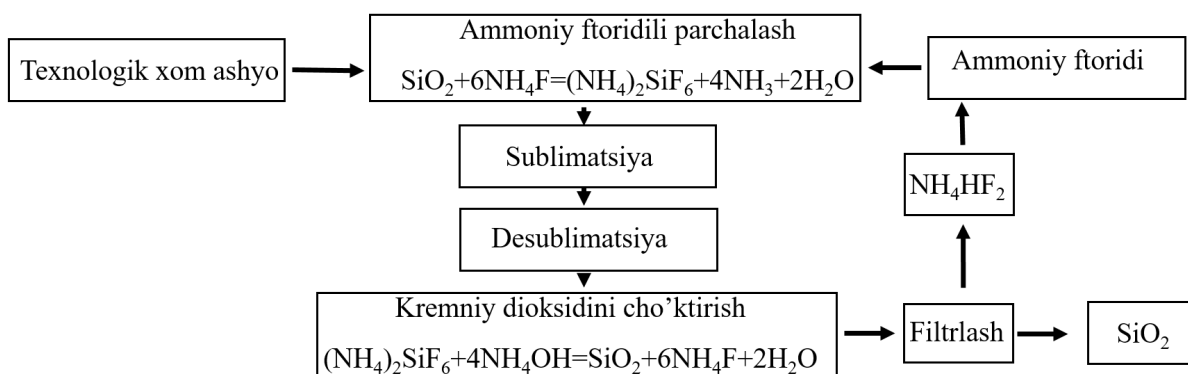
Agar ftorlash jarayoni ammoniy biftoridi ishtirokida amalga oshirilsa, reaksiyaning soddalashtirilgan ko‘rinishi (2)-reaksiyada keltirilgan [6]:



Hosil bo‘lgan geksaforsilikat ammoniy suvda yaxshi eruvchan kristall modda bo‘lib, texnologik sxemaga muvofiq (1-rasmga qarang), keyingi bosqichda ammoniy gidroksidi (NH_4OH) eritmasida gidrolizlanadi [1, 6]. Gidroliz jarayonida muhitning pH qiymati muhim ahamiyatga ega bo‘lib, u ishqoriy sharoitda ($\text{pH} \approx 8-10$) ushlab turildi. Ushbu bosqichda geksaforsilikat ammoniyning parchalanishi natijasida yuqori dispersli amorf SiO_2 cho‘kma holida ajralib chiqadi va ammoniy ftoridi qayta hosil bo‘ladi, bu jarayon (3)-reaksiya bilan ifodalanadi [6, 18]:



Cho‘kma holida hosil bo‘lgan SiO_2 texnologik sxemaga muvofiq filtratsiya yo‘li bilan ajratilib, distillangan suv bilan yuvildi va keyinchalik quritildi (1-rasm).



1-rasm. Ftorammoniy usuli bo‘yicha SiO_2 sintez sxemasi

Sintez jarayonida pH darajasi, harorat hamda boshlang‘ich reaktivlar konsentratsiyasi qat’iy nazorat qilinib, ularning SiO_2 zarralarining o‘lchami, sirt tuzilishi va disperslik darajasiga ta’siri baholandi. Ushbu parametrlarni optimallashtirish yuqori dispersli amorf SiO_2 ning barqaror strukturaviy va funksional xususiyatlarini shakllantirishda hal qiluvchi omil hisoblanadi [1, 5, 10].

Sintez qilingan yuqori dispersli amorf SiO_2 namunalarining strukturaviy, teksturaviy va funksional xususiyatlarini kompleks baholash maqsadida zamonaviy fizik-kimyoviy tadqiqot usullari qo‘llanildi [1, 2, 6]. Har bir usul amorf SiO_2 ning muayyan xususiyatlarini aniqlashga yo‘naltirildi.

SiO_2 zarralarining morfologiyasi, shakli va o‘lchamlari bo‘yicha taqsimotini o‘rganish uchun skanerlovchi elektron mikroskopiya (SEM) va transmissiyali elektron mikroskopiya (TEM) usullaridan foydalanildi [11, 15]. Ushbu usullar yordamida zarralarning sferik shakli, agregatsiya darajasi hamda nanoo‘lchamli tuzilishi baholandi.

Sintez qilingan namunalarining kristall yoki amorf holatini aniqlash rentgen difraksiyasi (XRD) usuli orqali amalga oshirildi [1, 6]. Difraktogrammalarda aniq kristall cho‘qqilarning yo‘qligi va keng diffuz maksimumlarning kuzatilishi SiO_2

ning amorf tuzilishga ega ekanligini tasdiqlovchi asosiy mezon sifatida qabul qilindi [1, 5].

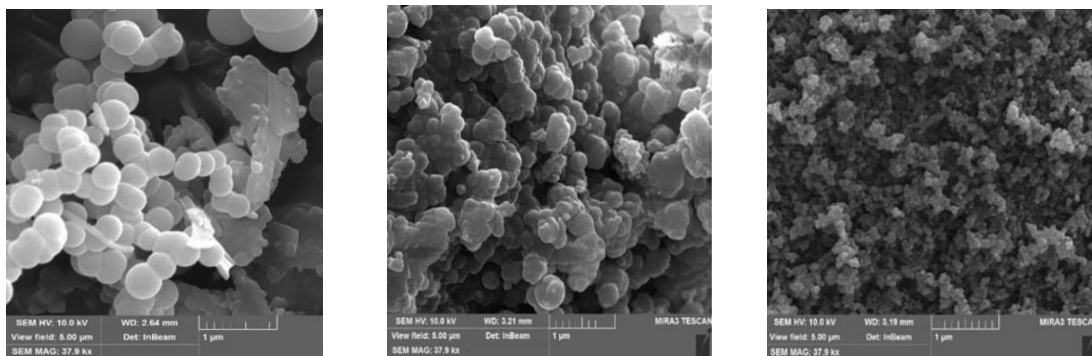
SiO₂ ning teksturaviy xususiyatlari, xususan oʻziga xos sirt maydoni va gʻovaklik koʻrsatkichlari azot adsorbsiya–desorbsiya izotermalari asosida BET (Brunauer–Emmett–Teller) usuli yordamida aniqlandi [8–10, 15]. Olingan natijalar yuqori dispersli SiO₂ ning sirt rivojlanganligini baholash va pirogen SiO₂ bilan qiyoslash imkonini berdi.

Sirt kimyoviy holati va funksional guruhlarini aniqlash uchun Fyure oʻzgartirishli infraqizil spektroskopiya (FTIR) qoʻllanildi [5, 6]. FTIR spektrlari asosida silanol ($\equiv\text{Si-OH}$) guruhlarining mavjudligi, adsorbsiyalangan suv va Si–O–Si bogʻlanishlari aniqlanib, sirt gidroksillanish darajasi baholandi [5].

Sintez qilingan SiO₂ ning adsorbsion xususiyatlari suvli muhitda model boʻyoqlar — metilen koʻk va Kongo qizil yordamida tadqiq qilindi [20, 21]. Adsorbsiya jarayonlari boʻyoqlar konsentratsiyasining vaqt boʻyicha oʻzgarishini spektrofotometrik usulda aniqlash orqali baholandi [22, 23]. Olingan natijalar SiO₂ ning sirt holati va elektrokinetik xususiyatlari bilan bogʻliq holda tahlil qilindi [20, 24].

Tahlillar va natijalar

Sintez qilingan yuqori dispersli amorf SiO₂ zarralarining morfologiyasi va oʻlchamlari skanerlovchi hamda transmissiyali elektron mikroskopiya (SEM/TEM) yordamida tadqiq qilindi. Olingan SEM mikrotasvirlar (2-rasm) SiO₂ zarralarining asosan sferik shaklga ega ekanligini koʻrsatdi. Zarralarning sferik morfologiya choʻkma hosil boʻlish jarayonida sirt energiyasining minimallasuvi va kolloid zarralarning oʻsish mexanizmlari bilan izohlanadi [1, 2, 11]. Yuqori dispersli materiallar uchun xos boʻlgan ushbu shakl sirt energiyasining minimallasuvi bilan bogʻliq ekanligi adabiyotlarda qayd etilgan [2, 10].



2-rasm. Texnogen xomashyodan olingan SiO₂ ning SEM tasviri

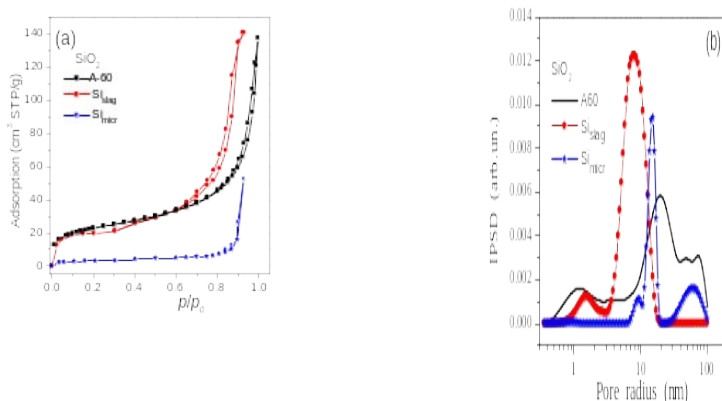
SEM tasvirlar (2-rasm) SiO₂ zarralarining asosan sferik shaklga ega ekanligini va nanooʻlchamli agregatlar hosil qilishini koʻrsatadi. Zarralar oʻlchamining aniq taqsimoti esa TEM va BET natijalari bilan kompleks baholandi. Bunday tor oʻlcham taqsimoti SiO₂ ning teksturaviy xususiyatlarini yaxshilashga, xususan sirt maydonining rivojlanishi va adsorbsion faollikning ortishiga ijobiy taʼsir koʻrsatadi [8–10, 15]. TEM tahlillari natijalari birlamchi zarralarning

nanoo'lchamli ekanligini, ayrim holatlarda esa ularning yumshoq agregatlar hosil qilishini ko'rsatdi, bu holat amorf SiO_2 uchun xos strukturaviy xususiyat sifatida baholanadi [5, 6].

Sintez jarayonida muhitning pH qiymati va geksaforsilikat ammoniy (GFSA) konsentratsiyasining zarralar morfologiyasi va o'lchamiga sezilarli ta'siri aniqlangan bo'lib, bu holat SEM tasvirlarda kuzatilgan umumiy morfologik tendensiya ko'rsatadi. Xususan, ishqoriy muhitda ($\text{pH} \approx 8-10$) gidroliz jarayonining tezlashuvi natijasida mayda va bir tekis o'lchamdagi SiO_2 zarralarining hosil bo'lishi kuzatildi. GFSA konsentratsiyasining oshishi esa yadro hosil bo'lish va o'sish jarayonlari nisbatini o'zgartirib, zarralar o'lchamining kattalashishiga hamda agregatsiya darajasining ortishiga olib kelishi mumkinligi aniqlandi. Bu holat kolloid tizimlar uchun xos bo'lgan yadro-o'sish mexanizmlari bilan yaxshi mos keladi [1, 2, 11].

Shunday qilib, pH qiymati va GFSA konsentratsiyasini optimallashtirish yuqori dispersli, morfologik jihatdan barqaror amorf SiO_2 zarralarini olishda hal qiluvchi omillardan biri ekanligi SEM tahlili (2-rasm) asosida ko'rsatildi.

Sintez qilingan yuqori dispersli amorf SiO_2 namunalarining teksturaviy xususiyatlari azot adsorbsiya-desorbsiya izotermalari asosida BET (Brunauer-Emmett-Teller) usuli yordamida baholandi [8-10, 15]. Olingan izotermalar tahlili (3-rasm) SiO_2 ning rivojlangan sirt maydoniga ega ekanligini ko'rsatdi, bu esa uning yuqori disperslik darajasi va nanoo'lchamli zarralar hosil bo'lishi bilan bevosita bog'liqdir [2, 10]. BET bo'yicha aniqlangan sirt maydonining yuqori qiymatlari sintez jarayonida cho'kma hosil bo'lish tezligi va yadro-o'sish mexanizmlarining muvozanatda kechganligini ko'rsatadi, bu kolloid tizimlar uchun xos bo'lgan umumiy qonuniyatlarga mos keladi [1, 2].



3-rasm. Azot adsorbsiya-desorbsiya izotermasi (BET)

3-rasmda keltirilgan azot adsorbsiya-desorbsiya izotermalarining shakli va kuzatilgan gisterezis halqalari SiO_2 namunalari mezog'ovakli tuzilishga ega ekanligini tasdiqlaydi [8, 9]. G'ovaklikning bunday turi yuqori dispersli amorf SiO_2 uchun xos bo'lib, u asosan zarralar agregatsiyasi natijasida ikkilamchi g'ovaklarning shakllanishi bilan izohlanadi [10, 15]. G'ovaklarning mavjudligi va ularning nisbatan bir tekis taqsimlanganligi (3-rasm) materialning adsorbsion va

katalitik jarayonlardagi samaradorligini oshiruvchi muhim omil hisoblanadi [14, 20].

Olingan teksturaviy ko'rsatkichlar tijorat A-60 markali pirogen SiO_2 bilan qiyosiy tahlil qilindi [3, 4]. Qiyoslash natijalari shuni ko'rsatdiki, texnogen xomashyodan ftorammoniy texnologiyasi yordamida sintez qilingan SiO_2 ning BET sirt maydoni ayrim hollarda A-60 pirogen SiO_2 ga yaqin yoki undan past bo'lsa-da, 3-rasmda aks etgan mezog'ovakli tuzilmaning rivojlanganligi uning amaliy qo'llanilish imkoniyatlarini kengaytiradi [6, 17]. Ayniqsa, sirt gidroksillanish darajasi va g'ovaklar orqali faol markazlarning ochiqqligi adsorbsion jarayonlarda muhim afzallik yaratadi [5, 20]. Izotermalarning shakli IUPAC tasnifiga ko'ra IV-turga mansub bo'lib, bu mezog'ovakli strukturaning mavjudligini tasdiqlaydi (3-rasm).

Shunday qilib, teksturaviy xususiyatlar tahlili va azot adsorbsiya–desorbsiya izotermalarining tahlili (3-rasm) texnogen xomashyodan olingan amorf SiO_2 ning strukturaviy jihatdan barqaror, rivojlangan sirtga ega va tijorat pirogen SiO_2 bilan raqobatbardosh material ekanligini ko'rsatadi. Bu esa uni adsorbsiya va sirtga bog'liq jarayonlarda istiqbolli material sifatida baholash imkonini beradi [17, 25].

Sintez qilingan yuqori dispersli amorf SiO_2 namunalarining sirt kimyoviy holati Fyurye o'zgartirishli infraqizil spektroskopiya (FTIR) yordamida o'rganildi [5, 6]. Olingan FTIR spektrlari amorf kremniy dioksidiga xos bo'lgan asosiy yutilish chiziqlarining mavjudligini tasdiqladi. Xususan, $1000\text{--}1200\text{ sm}^{-1}$ oralig'ida kuzatilgan intensiv keng polosalar Si–O–Si bog'lanishlarining asimmetrik tebranishlariga mos keladi va materialning amorf tuzilishini ko'rsatadi [5, 6]. $780\text{--}820\text{ sm}^{-1}$ atrofidagi yutilish chiziqlari esa Si–O–Si bog'lanishlarining simmetrik tebranishlari bilan bog'liq bo'lib, sintez qilingan SiO_2 ning skelet tuzilmasi barqaror ekanligini tasdiqlaydi [5].

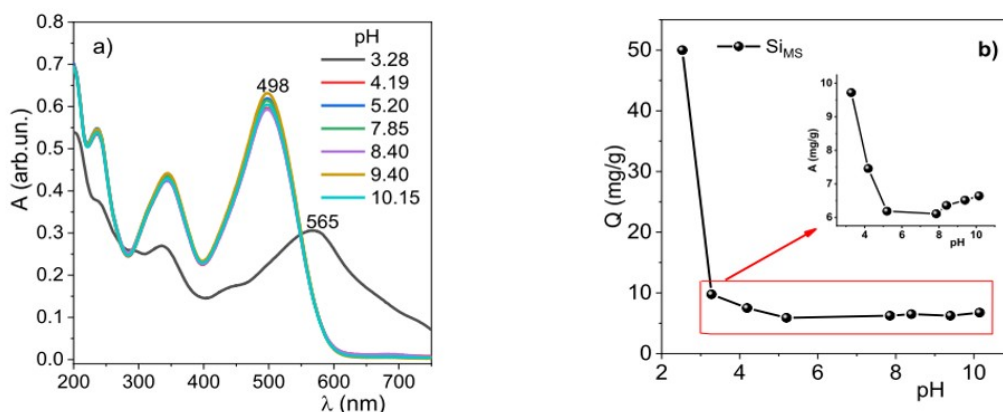
Spektrlarning yuqori to'lqin sonlari sohasida ($3200\text{--}3600\text{ sm}^{-1}$) kuzatilgan keng yutilish polosalari SiO_2 sirtida adsorbsiyalangan suv molekullari va vodorod bog'lari orqali bog'langan silanol ($\equiv\text{Si-OH}$) guruhlarining mavjudligidan dalolat beradi [5, 6]. Shuningdek, $1600\text{--}1650\text{ sm}^{-1}$ atrofidagi yutilish chiziqlari suv molekullarining deformatsion tebranishlariga tegishli bo'lib, sirtning gidrofil xususiyatlarini ko'rsatadi [6]. Ayrim namunalarda $3700\text{--}3750\text{ sm}^{-1}$ yaqinida zaif, ammo aniq cho'qqilarning kuzatilishi sirt bo'ylab nisbatan erkin joylashgan izolyatsiyalangan silanol guruhlarining mavjudligi bilan izohlanadi [5].

FTIR natijalari sintez qilingan amorf SiO_2 ning yuqori darajada gidroksillangan sirtga ega ekanligini ko'rsatadi. Sirt gidroksillanishi sintez sharoitlari, xususan gidroliz bosqichidagi pH qiymati va muhitdagi suv miqdori bilan bevosita bog'liq bo'lib, silanol guruhlarining ko'pligi materialning adsorbsion faolligi va kimyoviy modifikatsiyaga moyilligini oshiradi [5, 20]. Shu jihatdan, texnogen xomashyodan ftorammoniy texnologiyasi yordamida olingan SiO_2 ning sirt xususiyatlari uni adsorbsiya va kataliz jarayonlarida qo'llash uchun qulay material sifatida baholash imkonini beradi [14, 17].

Sintez qilingan yuqori dispersli amorf SiO_2 namunalarining adsorbsion xususiyatlari suvli muhitda model bo'yoqlar — metilen ko'k (MK) va Kongo qizil (KQ) yordamida baholandi [20, 21]. Olingan natijalar SiO_2 ning har ikkala

bo'yoqqa nisbatan sezilarli adsorbsion faollikka ega ekanligini ko'rsatdi. MK bo'yicha yuqori adsorbsion samaradorlik asosan kationli bo'yoq molekularining SiO_2 sirtidagi manfiy zaryadlangan faol markazlar bilan elektrostatik o'zaro ta'siri bilan izohlanadi [20, 22]. KQ bo'yicha adsorbsion ko'rsatkichlar nisbatan pastroq bo'lsa-da, ularning qiymatlari sirt tuzilishining rivojlanganligi va g'ovaklik darajasi bilan bevosita bog'liqligini namoyon etdi, bu holat 4-rasm (a, b) da keltirilgan spektral va izotermik natijalar bilan ham tasdiqlanadi [21, 24].

Adsorbsion jarayonlarning samaradorligi SiO_2 zarralarining elektrokinetik potentsiali (ζ -potensial) bilan uzviy bog'liqligi aniqlandi. Tadqiqotlar shuni ko'rsatadiki, muhitning pH qiymati ortishi bilan SiO_2 sirtidagi manfiy zaryad kuchayadi, bu esa kationli bo'yoqlar, xususan metilen ko'k adsorbsiyasining sezilarli ortishiga olib keladi [20, 23]. Aksincha, anionli Kongo qizil bo'yoq uchun elektrostatik itarilish omillari kuzatiladi, biroq 4-rasmda ko'rsatilganidek, sirt g'ovaklarining rivojlanganligi hamda vodorod bog'lari hosil bo'lishi adsorbsion jarayonni qisman kompensatsiyalaydi. Bu holat adsorbsiya mexanizmlarining kompleks xarakterga ega ekanligini ko'rsatadi [21, 24].



4-rasm. Si_{MS} uchun Kongo qizil (KQ) ning suv muhitining pH ga bog'liq yutish spektrlari (a) va adsorbsion izotermasi (b).

Sirt tuzilishi va adsorbsion xususiyatlar o'rtasidagi bog'liqlik FTIR va BET tahlillari natijalari bilan ham tasdiqlandi. Xususan, yuqori darajada gidroksillangan sirt, ya'ni silanol ($\equiv\text{Si}-\text{OH}$) guruhlarining ko'pligi adsorbsion faol markazlar sonini oshirib, bo'yoq molekularining SiO_2 yuzasiga mustahkam birikishini ta'minlaydi [5, 20]. Shu bilan birga, 4-rasmda aks etgan adsorbsion izotermalar mezog'ovakli tuzilmaning bo'yoq molekularining sirt va ichki g'ovaklarga diffuziyasini osonlashtirishini ko'rsatadi, bu esa adsorbsion sig'imning ortishiga xizmat qiladi [8–10, 15].

Umuman olganda, texnogen xomashyodan fforammoniy texnologiyasi yordamida olingan amorf SiO_2 ning adsorbsion xususiyatlari uning rivojlangan sirt tuzilishi, yuqori gidroksillanish darajasi va qulay elektrokinetik xususiyatlari bilan belgilanadi. 4-rasmda keltirilgan natijalar ushbu omillarning adsorbsion samaradorlikka bevosita ta'sirini yaqqol namoyon etadi. Bu esa mazkur materialni suvli muhitlarni tozalash va rangli ifloslantiruvchilarni olib tashlashda istiqbolli adsorbent sifatida baholash imkonini beradi [20, 25].

Sintez qilingan yuqori dispersli amorf SiO_2 ning asosiy fizik-kimyoviy va funksional xususiyatlari tijorat A-60 markali pirogen SiO_2 bilan qiyosiy tahlil qilindi. Qiyoslash materiallarning amaliy qo'llanish nuqtai nazaridan muhim bo'lgan sirt maydoni, tozaligi, adsorbsion faolligi hamda texnologik ustunliklari asosida amalga oshirildi [3, 4].

BET tahlili natijalariga ko'ra, texnogen xomashyodan ftorammoniy texnologiyasi yordamida olingan SiO_2 rivojlangan sirt maydoniga ega bo'lib, uning qiymatlari ayrim namunalarda A-60 pirogen SiO_2 ga yaqin bo'ldi. Pirogen SiO_2 odatda yuqori sirt maydoni bilan ajralib tursa-da, sintez qilingan amorf SiO_2 ning mezog'ovakli tuzilishi va sirt faol markazlarining ochiqqligi uni adsorbsion jarayonlar uchun raqobatbardosh materialga aylantiradi [3, 6, 10].

Materiallarning tozaligi jihatidan pirogen SiO_2 an'anaviy ravishda yuqori ko'rsatkichlarga ega bo'lsa, texnogen xomashyodan olingan SiO_2 ning tozaligi ham sanoat va ekologik qo'llanmalar uchun yetarli darajada yuqori ekanligi aniqlandi. Ftorammoniy texnologiyasi SiO_2 ni selektiv ajratish imkonini bergani sababli, ko'plab begona oksidlar va aralashmalar samarali tarzda ajratib tashlanadi [1, 6, 17].

Turli adsorbentlarning Kongo qizil (KQ) va metilen ko'k (MK) bo'yoqlariga nisbatan adsorbsion qobiliyatlari 1-jadvalda keltirilgan. Jadval ma'lumotlaridan ko'rinib turibdiki, Si_{MS} namunasi KQ va MK bo'yicha sezilarli adsorbsion sig'imga ega bo'lib, ayrim hollarda A-60 pirogen SiO_2 hamda boshqa past xarajatli adsorbentlar bilan taqqoslanadigan natijalarni namoyon etadi (1-jadval).

1-jadval.

A-60, Si_{MS} kabi turli adsorbentlarning MK va KQ ga nisbatan adsorbsion qobiliyati.

<i>Adsorbent</i>	<i>MK, Q (mg/g)</i>	<i>KQ, Q (mg/g)</i>
A-60 pirogen SiO_2	18.0	-
Uchuvchan kul	-	22.12
Faollashtirilgan ko'mir chiqindilari	-	15.38
Kofe chiqindilari asosidagi adsorbent	25.73	8.87
Si_{MS} (ushbu ish)	20.0	11.0

1-jadval ma'lumotlaridan ko'rinib turibdiki, Si_{MS} namunasi metilen ko'k bo'yicha nisbatan yuqori, Kongo qizil bo'yicha esa o'rtacha adsorbsion sig'im namoyon etadi, bu esa uning sirt xususiyatlari va elektrokinetik holati bilan izohlanadi.

Adsorbsion faollikni baholash natijalari shuni ko'rsatdiki, texnogen xomashyodan sintez qilingan SiO_2 metilen ko'k va Kongo qizil bo'yoqlariga nisbatan yuqori adsorbsion samaradorlik namoyon etadi. Ushbu holat uning rivojlangan sirt tuzilishi, yuqori gidroksillanish darajasi va qulay elektrokinetik xususiyatlari bilan izohlanadi [5, 20]. Ayrim sharoitlarda adsorbsion ko'rsatkichlar pirogen SiO_2 bilan taqqoslanadigan darajada bo'lib, bu holat 1-jadvalda keltirilgan qiyosiy ma'lumotlar bilan ham tasdiqlanadi [3, 4].

Texnologik jihatdan ftoqrammoniy usulining muhim ustunliklari mavjud. Pirogen SiO_2 ishlab chiqarish yuqori haroratlar va katta energiya sarfini talab qilsa, taklif etilgan texnologiya nisbatan past haroratlarda amalga oshiriladi [3, 7]. Bundan tashqari, texnogen xomashyodan foydalanish qimmat va cheklangan tabiiy resurslarga bo'lgan ehtiyojni kamaytiradi hamda sanoat chiqindilarini qayta ishlash orqali ekologik yuklamani sezilarli darajada pasaytiradi [18, 19]. Reaktivlarning qayta tiklanish imkoniyati esa jarayonning iqtisodiy samaradorligini yanada oshiradi [18, 25].

Shu tariqa, 1-jadvalda keltirilgan qiyosiy tahlil natijalari texnogen xomashyodan olingan yuqori dispersli amorf SiO_2 ning strukturaviy va adsorbsion xususiyatlari hamda texnologik afzalliklari jihatidan tijorat pirogen SiO_2 ga munosib muqobil material ekanligini ko'rsatadi [17, 25].

Xulosa

Olib borilgan tadqiqotlar natijasida metallurgiya sanoati texnogen chiqindilari asosida ftoqrammoniy texnologiyasi yordamida sintez qilingan kremniy dioksidi yuqori dispersli va amorf tuzilishga ega ekanligi aniqlandi. SEM/TEM va XRD tahlillari SiO_2 zarralarining asosan sferik shaklda, nanoo'lchamli va kristall fazalardan holi ekanligini tasdiqladi, bu esa sintez jarayonining samarali va barqaror kechganligini ko'rsatadi.

BET, FTIR va adsorbsion tadqiqotlar natijalari sintez qilingan SiO_2 ning rivojlangan sirt maydoni, mezog'ovakli tuzilma va yuqori darajada gidroksillangan sirtga ega ekanligini namoyon etdi. Mazkur sirt xususiyatlari metilen ko'k va Kongo qizil bo'yoqlari misolida baholangan adsorbsion faollikning yuqori bo'lishini ta'minladi. Ayrim sharoitlarda texnogen xomashyodan olingan amorf SiO_2 ning adsorbsion ko'rsatkichlari tijorat pirogen SiO_2 ga yaqin yoki undan ustun ekanligi aniqlandi, bu esa uning amaliy qo'llanish imkoniyatlarini kengaytiradi.

Tadqiqot natijalari ftoqrammoniy usulining muhim texnologik ustunliklarga ega ekanligini ko'rsatdi. Ushbu yondashuv nisbatan past haroratlarda amalga oshiriladi, reaktivlarning qayta tiklanishini ta'minlaydi va qimmat tabiiy xomashyolar o'rniga sanoat chiqindilaridan foydalanish imkonini beradi. Natijada jarayonning energiya sarfi kamayadi va ekologik yuklama sezilarli darajada pasayadi.

Foydalanilgan adabiyotlar ro'yxati

1. Iler R. K. The Chemistry of Silica: Solubility, Polymerization, Colloid and Surface Properties, and Biochemistry. — New York: Wiley, 1979.
2. Brinker C. J., Scherer G. W. Sol–Gel Science: The Physics and Chemistry of Sol–Gel Processing. — Boston: Academic Press, 1990.
3. Bergna H. E., Roberts W. O. (eds.). Colloidal Silica: Fundamentals and Applications. — Boca Raton: CRC Press, 2005.
4. Legrand A. P. The Surface Properties of Silicas. — Chichester: Wiley, 1998.
5. Zhuravlev L. T. The surface chemistry of amorphous silica. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2000, 173, 1–38.

6. Vansant E. F., Van der Voort P., Vrancken K. C. Characterization and Chemical Modification of the Silica Surface. — Amsterdam: Elsevier, 1995.
7. Hench L. L., West J. K. The sol–gel process. *Chemical Reviews*, 1990, 90, 33–72.
8. Sing K. S. W., Everett D. H., Haul R. A. W., Moscou L., Pierotti R. A., Rouquérol J., Siemieniewska T. Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity. *Pure and Applied Chemistry*, 1985, 57, 603–619.
9. Brunauer S., Emmett P. H., Teller E. Adsorption of gases in multimolecular layers. *Journal of the American Chemical Society*, 1938, 60, 309–319.
10. Gregg S. J., Sing K. S. W. Adsorption, Surface Area and Porosity. — London: Academic Press, 1982.
11. Pierre A. C., Pajonk G. M. Chemistry of aerogels and their applications. *Chemical Reviews*, 2002, 102, 4243–4265.
12. Deng Y., Zhao D. Ordered mesoporous materials synthesized by non-ionic surfactant templating. *Advanced Materials*, 2001, 13, 445–449.
13. Wang S., Zhu Z. Characterisation and environmental application of mesoporous materials. *Journal of Hazardous Materials*, 2007, 136, 946–967.
14. Bansal R. C., Donnet J.-B., Stoeckli F. Active Carbon. — New York: Marcel Dekker, 1988.
15. Lowell S., Shields J. E., Thomas M. A., Thommes M. Characterization of Porous Solids and Powders: Surface Area, Pore Size and Density. — Dordrecht: Springer, 2004.
16. Mullin J. W. Crystallization. — Oxford: Butterworth-Heinemann, 2001.
17. Kordás K., Beke S., Leino A.-R., Tóth G., Uusimäki A., Vähäkangas J., Jantunen H. Production of nanostructured silica from industrial by-products. *Journal of the European Ceramic Society*, 2003, 23, 1247–1253.
18. Ahmaruzzaman M. A review on the utilization of fly ash. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2010, 36, 327–363.
19. Querol X., Moreno N., Umaña J. C., Alastuey A., Hernández E., López-Soler A., Plana F. Synthesis of zeolites from coal fly ash: An overview. *International Journal of Coal Geology*, 2002, 50, 413–423.
20. Mohan D., Pittman C. U. Activated carbons and low-cost adsorbents for remediation of water pollution. *Journal of Hazardous Materials*, 2006, 137, 762–811.
21. Foo K. Y., Hameed B. H. Insights into the modeling of adsorption isotherm systems. *Chemical Engineering Journal*, 2010, 156, 2–10.
22. Lagergren S. About the theory of so-called adsorption of soluble substances. *Kongliga Svenska Vetenskapsakademiens Handlingar*, 1898, 24, 1–39.
23. Ho Y. S., McKay G. Pseudo-second order model for sorption processes. *Process Biochemistry*, 1999, 34, 451–465.
24. Liu Y., Shen L. From Langmuir kinetics to first- and second-order rate equations for adsorption. *Desalination*, 2008, 223, 13–19.

25. Knez Ž., Markočič E., Leitgeb M., Primožič M., Knez Hrnčič M., Škerget M. Industrial applications of sol–gel derived materials. *Journal of Sol–Gel Science and Technology*, 2014, 70, 385–398.