

**UOT 541.64:543.544****FOSFORTƏRKİBLİ HİBRİD KOMPOZİTLƏ RODAMİN 6G BOYAQ  
MADDƏSİNİN SORBSİYASININ TƏDQIQI****A.M.MƏHƏRRƏMOV, S.B.ƏLİYEVƏ,  
R.M.ALOSMANOV, A.Ə.ƏZİZOV*****Bakı Dövlət Universiteti  
solmaz.aliyeva@yahoo.com***

*Butadien kauçuku və bentonitin birgə oksidləşmə xlorfosforlaşma reaksiyası və sonrakı hidrolizi ilə sintez edilmiş hibrid kompozitlə Rodamin 6G boyaq maddəsinin sulu məhlullardan sorbsiyası öyrənilmişdir. Boyaq maddəsinin ilkin qatılığının prosesə təsiri öyrənilmiş, sorbsiya izotermələri Lenqmür, Freyndlix və Dubinin-Raduşkeviç modelləri ilə işlənmişdir. Hesablanmış model parametrləri ədəbiyyatda olan uyğun məlumatlarla müqayisə olunaraq, hibrid kompozitin boyaq maddəsinə görə effektiv sorbent olduğu müəyyənəşdirilmişdir.*

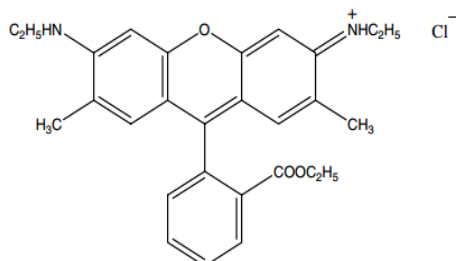
**Açar sözlər:** hibrid kompozit, Rodamin 6G, sorbsiya

Müasir dövrdə sintetik boyaq maddələrinin toxuculuq, xalçaçılıq, qida, rezin, kağız, dərman və plastik kütlə istehsalında geniş istifadəsi onların müxtəlif su hövzələrinə yayılmasına səbəb olur. Hal-hazırda sənaye miqyasında ildə  $7 \cdot 10^5$  ton müxtəlif boyaq maddələri istehsal olunur ki, onların da təxminən 10%-i tullantı şəklində ətraf mühitə atılır [1].

Sintetik boyaq maddələri yüksək molekulyar kütləsinə malik olan mürəkkəb quruluşlu üzvi birləşmələrdir. Onlar müxtəlif amillərin təsirinə (temperatur, işıq şüaları, istilik, mikroorqanizmlər) qarşı davamlıdırlar. Boyaq maddələri suda ya uzun müddət dəyişməz qalır, ya da daha zəhərli birləşmələrə çevrilirlər. Dünyada istehsal olunan boyaq maddələrinin əksəriyyəti insan orqanizmi üçün zəhərli, kanserogen və mutagen təsirlərə malikdir. Bundan başqa boyaq maddələri suyun rənginin dəyişməsinə səbəb olur ki, bu da fotosintez prosesinə maneəçilik törədir. Beləliklə, tullantı sularının boyaq maddələrindən təmizlənməsi olduqca vacib məsələlərdəndir [2,3].

Təqdim olunan işdə butadien kauçuku (BK) və bentonitin birgə kimyəvi modifikasiyası ilə sintez edilmiş hibrid kompozitlə (HbK) Rodamin 6G boyaq

maddəsinin (R6GBM) sulu məhlullardan sorbsiyası tədqiq olunmuşdur. R6GBM-in molekulyar quruluşu aşağıdakı şəkildə verilmişdir:



Şək. 1. R6GBM-in molekulyar quruluşu

R6GBM ksantənələr sinfinə aid olan kation tipli sintetik boyaq maddəsidir. O, ipək, pambıq, yun, kağız, dəri və plastik kütlələrin rənglənməsində, lazer cərrahiyyəsində, mikrobiologiyada, eləcə də orqanizmdə dərman və psixotrop maddələr, alkoqolu aşkar etmək üçün istifadə olunur. Bununla yanaşı R6GBM insektisid kimi və "C.I. Solvent Red 36" kompleks boyaq maddəsinin tərkib hissəsi kimi də tətbiq olunur. R6GBM dəridə, gözlərdə və nəfəs yollarında qıcıqlanmaya, xroniki bronxit, qastrit, qaraciyər və öd yolları xəstəliklərinə, sinir sistemi və qanda dəyişikliklərə səbəb ola bilər [4]. O, həmçinin böyük qatılıqlarda mutagen təsirə də malikdir.

### Təcrübi hissə

**İstifadə edilmiş reaktiv və materiallar:** Aparılan tədqiqatlarda istifadə edilmiş BK Voronej sintetik kauçuk zavodunun məhsuludur. Kauçuk 96% 1,4-sis vəziyyətdə birləşmiş zvenolardan ibarətdir.

Bentonit təbii gil mineralı qrupuna aiddir. 76% montmorillonit, 8% kvars, 12% dolomit və 4% digər minerallardan ibarətdir. Bentonit kimyəvi tərkibcə 62.70% SiO<sub>2</sub>, 20.10% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 2.16% Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 2.29% CaO, 3.64% MgO, 0.27% Na<sub>2</sub>O, 2.53% K<sub>2</sub>O, 0.21% TiO<sub>2</sub>, 0.02% P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-dən təşkil olunmuşdur [5].

Tədqiqat işində "k.t." olan PCl<sub>3</sub>, CCl<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> təmizlənmədən istifadə edilmişdir. Oksigen isə reaksiya mühitinə qatı H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> turşusundan keçirilməklə verilmişdir.

Sorbat kimi təmizlik dərəcəsi "a.ü.t" olan R6GBM (C<sub>28</sub>H<sub>31</sub>ClN<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 479.02 q/mol, λ<sub>max</sub> –528 nm) götürülmüşdür. O, su və spirtlərdə həll olan qırmızı-qəhvəyi və ya tünd-qırmızı rəngli kristallik maddədir [4]. Boyaq maddəsinin ana məhlulu 1.0 q maddənin 1.0 l distillə suyunda həll olunması ilə hazırlanmışdır. İşçi məhlullar isə ana məhlulun durulaşdırılması ilə alınmışdır.

**Metodlar.** HbK mexaniki qarışdırıcı, əks soyuducu, termometr və qazaparan boru ilə təchiz edilmiş dördboğazlı yumrudibli kolbada oksidləşmə xlorfosforlaşma reaksiyası ilə məlum metodika üzrə sintez olunmuşdur [6]. BK

və bentonit k.h. ilə 1:1 nisbətində götürülmüşdür. HbK-nın üzvi komponentini təşkil edən BK-nın  $\text{CCl}_4$ -də 2%-li məhlulu hazırlanmış, qeyri-üzvi komponent kimi istifadə edilən bentonit məhluluna əlavə edilərək qarışdırılmışdır. Sonra reaksiya qarışığına  $\text{PCl}_3$  (BK: $\text{PCl}_3$ =1:5) əlavə olunmuş və qarışıqdan 7 l/saat sürətlə oksigen buraxılmışdır. Reaksiya 8 saat müddətində aparılmış, alınmış bərk faza maye fazadan ayrılmışdır. Bərk fazanı təşkil edən HbK neytral pH-a qədər distillə suyu ilə yuyularaq, əvvəl havada, sonra isə vakuum-quruducu sobada 50 °C temperaturda sabit çəkiyə qədər qurudulmuşdur.

Kompozitdə fosforun miqdarı təyini üçün nümunə platin tora yerləşdirilərək oksigen doldurulmuş germetik kolbada yandırılmış və yanma məhsullarında uyğun ölçmələr aparılmışdır [7].

Kompozitdə funksional qrupların miqdarı statik mübadilə tutumunun ( $SMT_{Na^+}$ ) uyğun metodika üzrə təyin edilməsi ilə müəyyənləşdirilmişdir [3].

Boyaq maddəsinin sorbsiyası statik şəraitdə aparılmışdır. Aparılan tədqiqatlarda R6GBM-in ilkin qatılığı 0.4-43.0 mq/l ( $V=0.015l$ ;  $g=0.015q$ ) intervalında dəyişdirilmişdir. 24 saatdan sonra bərk və maye fazalar bir-birindən ayrılmış və məhlulda boyaq maddəsinin qatılığı UV-Vis spektrofotometrində təyin olunmuşdur.

Təcrübi nəticələr kompozitin boyaq maddəsinə görə sorbsiya tutumu ( $Q$ , mq/q) və sorbsiya dərəcəsi ( $R\%$ ) kimi ifadə olunmuş, aşağıdakı formullarla hesablanmışdır:

$$Q = \frac{(C_0 - C_{tar})V}{g} \quad (1)$$

$$R = \frac{C_0 - C_{tar}}{C_0} \cdot 100\% \quad (2)$$

burada,  $C_0$  və  $C_{tar}$  – uyğun olaraq boyaq maddəsinin ilkin və tarazlıqlı qatılığı, mq/l;  $g$  – kompozitin kütləsi, q;  $V$  - məhlulun həcmidir, l.

### Nəticələr və onların müzakirəsi

Aparılan tədqiqatlarda müəyyən edilmişdir ki, qəhvəyi rəngli, toz halında olan HbK heç bir üzvi həlledici, qeyri-üzvi turşu və qələvi məhlullarında həll olmayan üçölçülü fəza quruluşudur. HbK-da fosforun miqdarı 3.6 % -dir,  $SMT_{Na^+}$  -nin qiyməti isə 4.0 mq – ekv/q təşkil edir.

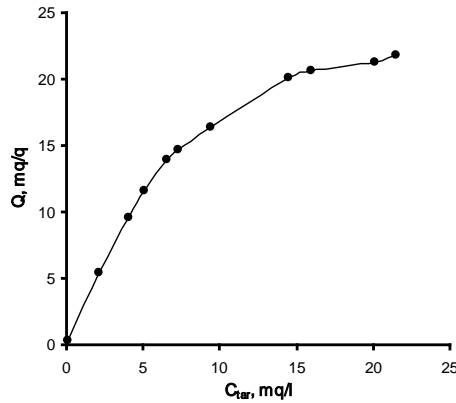
Məlumdur ki, sorbatların bərk və maye fazalar arasında paylanmasına təsir edən əsas faktorlardan biri də onların ilkin qatılığıdır. Bunu nəzərə alaraq əvvəlcə sorbsiyaya boyaq maddəsinin ilkin qatılığının təsiri öyrənilmişdir. Tədqiqatın nəticələri 1-ci cədvəldə verilmişdir.

**HbK-nın sorbsiya tutumu və sorbsiya dərəcəsinin boyaq maddəsinin məhluldakı ilkin qatılığından asılılığı**

|              |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
|--------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| $C_0$ , mq/l | 0.4  | 8.0  | 14.0 | 17.0 | 21.0 | 22.0 | 26.0 | 35.0 | 37.0 | 41.0 | 43.0 |
| $Q$ , mq/q   | 0.3  | 5.5  | 9.6  | 11.6 | 13.9 | 14.7 | 16.4 | 20.1 | 20.6 | 21.3 | 21.8 |
| $R$ , %      | 75.3 | 71.7 | 70.4 | 69.5 | 68.1 | 67.0 | 63.5 | 58.1 | 56.3 | 51.4 | 50.3 |

Göründüyü kimi, boyaq maddəsinin məhlulda nisbətən aşağı ilkin qatılıqlarında ( $C_0 < 26.0$  mq/l) sorbsiya dərəcəsi yüksək qiymətlərə malikdir ( $R > 60\%$ ). Məhlulun nisbətən aşağı qatılıqlarında mühitdəki sorbat molekullarının kifayət qədəri kompozitin aktiv mərkəzlərilə qarşılıqlı təsir imkanına malik olduğundan sorbsiya dərəcəsi yüksək olur. İlkin qatılığın artması ilə sorbsiya dərəcəsi getdikcə azalır. Məhlulun ilkin qatılığının nisbətən yüksək qiymətlərində sorbsiya mərkəzləri dolduğu üçün aşağı sorbsiya dərəcəsi müşahidə olunur. Boyaq maddəsi məhlulun ilkin qatılığı yüksəldikcə kompozitin sorbsiya tutumu da ( $Q$ ) artır. Əvvəlcə  $Q$  yüksək sürətlə artır, boyaq maddəsi məhlulun yüksək qatılığında isə stabilləşir. Bu onu göstərir ki, sorbsiya üçün HbK məhdud sayda aktiv mərkəzlərə malikdir.

Alınmış nəticələr əsasında sorbsiya izotermi qurulmuşdur (şəkil 2).



**Şəkil 2.** HbK ilə R6GBM-nin sorbsiya izotermi ( $V=0.015$  l ,  $g=0.015$  q ,  $T=20 \pm 2^\circ\text{C}$ )

Sonrakı mərhələdə sorbsiya izotermi Lenqmür, Freyndlix və Dubinin-Raduşkeviç modelləri ilə işlənmişdir [9]. Modellərin müvafiq tənlikləri qeyri-xətti formada uyğun olaraq (3); (4); (5) formullarında göstərilmişdir:

$$Q = \frac{Q_{maks} K_L C_{tar}}{1 + K_L C_{tar}} \quad (3)$$

$$Q = K_F C_{tar}^{1/n} \quad (4)$$

$$Q = (Q_s) \exp(-k_{D-R} (RT \ln(1 + \frac{1}{C_{tar}}))^2) \quad (5)$$

burada,  $C_{tar}$  – boyaq maddəsinin tarazlıq qatılığı, ( $mq/l$ );  $Q$  – tarazlıq halında kompozitin sorbsiya tutumu ( $mq/q$ );  $Q_{maks}$  – monomolekulyar təbəqəyə uyğun kompozitin maksimum sorbsiya tutumu ( $mq/q$ );  $Q_s$  – izoterm nəzəri sorbsiya tutumu ( $mq/q$ );  $K_L$  – Lenqmür izoterm sabiti ( $l/q$ );  $K_F$  – Freyndlix izoterm sabiti ( $mq/q$ )·( $l/mq$ );  $1/n$  – qeyri-bircinslik əmsalı;  $k_{D-R}$  – Dubinin-Raduşkeviç izoterm sabitidir ( $mol^2/kC^2$ ). Dubinin-Raduşkeviç modelinə görə orta adsorbsiya enerjisi ( $E$ ,  $kC/mol$ ) aşağıdakı formulla hesablanır:

$$E = \left[ \frac{1}{\sqrt{2k_{D-R}}} \right] \quad (6)$$

Modellərin uyğun parametrlərinin təyin olmuş qiymətləri 2-ci cədvəldə verilmişdir (cədvəldə  $r^2$  – korrelyasiya əmsalındır). Bu cədvəldə həm də R6GBM-in sorbsiyasına dair bir sıra ədəbiyyat məlumatları verilmişdir [10-12]. Müəlliflər adsorbent kimi "Attapulqite", "Filnt" gilləri [11], bentonit [12], düyü qabığı [10] kimi materiallardan istifadə etmişlər.

Cədvəl 2

**HbK ilə R6GBM-in sorbsiya izoterm sabitləri**

| Lenqmür    |       |       |        | Freyndlix |        |        | Dubinin-Raduşkeviç |                   |      |        | Ədəbiyyat |
|------------|-------|-------|--------|-----------|--------|--------|--------------------|-------------------|------|--------|-----------|
| $Q_{maks}$ | $K_L$ | $R_L$ | $r^2$  | $K_F$     | $1/n$  | $r^2$  | $Q_{maks}$         | $K_{D-R}$         | $E$  | $r^2$  |           |
| 32.2       | 0.106 | 0÷1   | 0.9885 | 2.517     | 0.8034 | 0.9703 | 14.7               | $1 \cdot 10^{-7}$ | 0,45 | 0.9018 | Bu məqalə |
| 111.1      | 0.450 |       | 0.9940 | 36.728    | 0.8500 | 0.9270 | –                  | –                 | –    | –      | [12]      |
| 112.4      | 0.130 |       | 0.9550 | 0.095     | 0.6349 | 0.9990 | –                  | –                 | –    | –      | [10]      |
| –          | –     | –     | –      | 0.313     | 1.3858 | 0.9495 | –                  | –                 | –    | –      | [11]      |
| –          | –     | –     | –      | 0.204     | 0.9952 | 0.9258 | –                  | –                 | –    | –      | [11]      |

Cədvəldən görüldüyü HbK ilə sorbsiya Lenqmür və Freyndlix modellərlə nisbətən yaxşı təsvir olunur. Bu onu göstərir ki, sorbsiya əsasən aktivliylə fərqlənən müxtəlif təbiətli mərkəzlərdə monomolekulyar təbəqənin yaranması ilə baş verir. Lengmür modelinin  $R_L$  parametrlərinin 0÷1 intervalında dəyişməsi HbK, bentonit və düyü qabığının R6GBM üçün effektiv sorbent olduğunu göstərir. HbK sorbenti üçün Freyndlix modelinin  $1/n$  parametrlərinin 1-dən kiçik olması proses zamanı fiziki prosesin üstünlük təşkil etdiyini göstərir. Analoji nəticə bentonit, düyü qabıqları və "Filnt" gili ilə sorbsiya prosesində də fiksə olunmuşdur. "Attapulqite" gilində isə kimyəvi proses əsas rol oynayır. Freyndlix modelinin  $K_F$  parametrlərinə görə HbK sorbenti ədəbiyyatda olan digər sorbentlərlə müqayisə olunmuşdur:

Bentonit > HbK > "Attapulqite" gili > "Filnt" gili > Düyü qabığı

Göründüyü kimi, HbK R6GBM-ə sorbsiya yaxınlığına görə, ancaq bentonitdən geri qalır və effektiv hesab oluna bilər.

Dubinina-Raduşkeviç modelinə görə hesablanmış orta adsorbsiya enerjisinin nisbətən kiçik qiyməti (cədvəl 2) boyaq maddəsinin molekulyar sorbsiya olduğunu göstərir.

#### ƏDƏBİYYAT

1. Panda H. Modern Technology of Textile Dyes and Pigments. Delhi: Nat. Ins. Ind. Res, 2004, 740 p.
2. Abraham R., Freeman H.S. Environmental Chemistry of Dyes and Pigments. New York: Wiley, 1996, 352 p.
3. Hunger K. Industrial Dyes. Chemistry, Properties, Applications. Weinheim : Wiley-VCH, 2003, 685 p.
4. Sabnis R.W. Handbook of Biological Dyes and Stains: Synthesis and Industrial Applications. Hoboken, NJ : Wiley-Blackwell, 2010, 544 p.
5. Harben P.W. The Industrial Minerals Handbook. Worcester Park, Surrey, UK: IMIS, 2002, 412 p.
6. Alosmanov R.M. Divinil kauçukunun oksidləşmə xlorfosforlaşma reaksiyasının qanunauyğunluqları // Kimya problemləri, 2012, №1, s.37- 49.
7. Bock R. A Handbook of Decomposition Methods in Analytical Chemistry. New York: Wiley, 1979, 432 p.
8. Селеменев В.Ф., Славинская Г.В., Хохлов В.Ю. и др. Практикум по ионному обмену. Воронеж: ВГУ, 2004, 160 с.
9. Foo K.Y., Hameed B.H. Insights into the Modeling of Adsorption Isotherm Systems // Chemical Engineering Journal, 2010, v.156, No1, p.2-10.
10. Özdeş D., Gündoğdu A., Bulut V. Rodamin 6G boyarmaddesinin pirinç kabukları üzerine adsorpsiyonu // Dumlupınar Üniversitesi. Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi, 2009, № 20, s.19-30.
11. Baqir S.J., Athab Z.H., Saad T.S. Adsorption Study for Removal of Rhodamine 6G from Aqueous Solutions by Using Iraqi Attapulgit and Flint Clays // Journal of Babylon University. Pure and Applied Sciences, 2013, v. 21, No 5, p.1854-1862.
12. Farhan A.M., Sameen A.S. Kinetic Study of Adsorption Rhodamine 6G Dye from Aqueous Solutions using Bentonite Clay // American Journal of Environmental Engineering, 2014, v.4, No 1, p.11-17.

#### ИССЛЕДОВАНИЕ СОРБЦИИ КРАСИТЕЛЯ РОДАМИНА 6Ж С ФОСФОРСОДЕРЖАЩИМ ГИБРИДНЫМ КОМПОЗИТОМ

**А.М.МАГЕРРАМОВ, С.Б.АЛИЕВА, Р.М.АЛОСМАНОВ, А.А.АЗИЗОВ**

#### РЕЗЮМЕ

Изучена сорбция из водных растворов красителя Родамина 6Ж с гибридным композитом, синтезированным совместной реакцией окислительного хлорфосфорилирования бутадиенового каучука и бентонита, с последующим гидролизом полученного продукта реакции. В ходе исследования было изучено влияние исходной концентрации красителя на процесс сорбции. Изотермы сорбции были обработаны моделями Ленгмюра, Фрейндлиха и Дубинина-Радушкевича. Вычисленные параметры были сопоставлены с соответствующими литературными данными. Полученные результаты позволяют сделать вывод, что гибридный композит представляет собой эффективный сорбент для красителя Родамина 6Ж.

**Ключевые слова:** гибридный композит, Родамин 6Ж, сорбция

**INVESTIGATION OF SORPTION PROPERTIES OF RHODAMINE 6G DYE  
BY PHOSPHORUS-CONTAINING HYBRID COMPOSITE**

**A.M.MAHARRAMOV, S.B.ALIYEVA, R.M.ALOSMANOV, A.A.AZIZOV**

**SUMMARY**

The paper studies the sorption of Rhodamine 6G dye from aqueous solutions with the hybrid composite synthesized via oxidative chlorophosphorylation of butadiene rubber and bentonite, and their subsequent hydrolysis. The influence of Rhodamine 6G's initial concentration on the sorption process is examined in the study, and the sorption isotherms are processed in accordance with the Langmuir, Freundlich and Dubinin-Radushkevich models. The calculated model parameters were compared with the corresponding data in literature, and it was determined that the hybrid composite is an effective sorbent for Rhodamine 6G.

**Key words:** hybrid compsite, Rhodamine 6G, sorption

*Redaksiyaya daxil oldu: 18.05.2015-ci il*  
*Çapa imzalandı:25.06.2015-ci il*