

Streszczenie

W niniejszej pracy dokonano syntezy kompozytów węglowo-haloizytowych, w których nośnikiem węgla był haloizyt o różnej morfologii, a prekursorem węgla była celuloza mikrokrystaliczna. Zastosowano dwie metody syntezy kompozytów węglowo-haloizytowych: metodę impregnacji haloizytu w roztworze celulozy (celulozę roztworzono uprzednio w odczynniku Cross-Bewana) i metodę mielenia haloizytu i celulozy na sucho. Kompozyty pirolizowano w dwóch temperaturach: 500°C i 800°C.

Otrzymane kompozyty węglowo-haloizytowe były scharakteryzowane za pomocą następujących metod: skaningowej mikroskopii elektronowej ze spektroskopią dyspersji energii (analiza SEM/EDS), proszkowej dyfrakcji rentgenowskiej (XRPD), niskotemperaturowej adsorpcji azotu, spektroskopii w podczerwieni z transformacją Fouriera (FTIR), spektroskopii Ramana, oznaczania tlenowych grup funkcyjnych metodą Boehm'a, wyznaczania punktu zerowego ładunku węgla (pH_{PZC}) i inwersyjnej chromatografii gazowej (IGC).

Otrzymane kompozyty węglowo-haloizytowe zastosowano jako adsorbenty triklosanu, chloroksylenolu i chlorofenu z wody za pomocą pomiarów adsorpcji w układzie statycznym. Sprawdzone wpływy rodzaju adsorbentu, jego masy oraz pH i temperatury środowiska. Modele kinetyczne pseudo-pierwszego, pseudo-drugiego i model dyfuzji wewnątrzcząsteczkowej Webera-Morrisa dopasowano do otrzymanych danych eksperymentalnych. Modele izoterm adsorpcji: Freundlicha, Langmuira (model jednocentrowy), Langmuira (model wielocentrowy), Temkina i Dubinina-Radushkevicha dopasowano do danych eksperymentalnych. Pomiary adsorpcji w układzie dynamicznym wykonano w celu wyznaczenia stałych równowagi adsorpcji i pojemności adsorpcyjnych. Stałe równowagi adsorpcji wyznaczono metodą podziału piku (PD), a pojemności adsorpcyjne – metodą krzywej przebiccia (BC).

Na podstawie analizy SEM/EDS potwierdzono obecność węgla na powierzchni haloizytu. Na podstawie dyfrakcji rentgenowskiej i spektroskopii Ramana potwierdzono obecność węgla krystalicznego w kompozytach węglowo-haloizytowych. Największą zawartością węgla krystalicznego charakteryzuje się kompozyt HNT-m 800. Widma FTIR pozwoliły potwierdzić zmianę struktury kompozytów węglowo-haloizytowych w porównaniu z haloizytem niemodyfikowanym i wskazują na największą siłę wiązania węgla z haloizytem w przypadku kompozytu HNT-m 800. Na podstawie metody Boehm'a stwierdzono

największą zawartość karbonylowych grup funkcyjnych. Wartości zerowego ładunku węgla wskazują na to, że w środowisku o pH ~ 6 powierzchnia kompozytów ma ładunek dodatni. Kompozyt HNT-m 800 charakteryzuje się również najwyższą wartością energii swobodnej adsorpcji i wysokim stosunkiem stałej zasadowej do stałej kwasowej K_b/K_a , co determinuje proces adsorpcji.

Na podstawie wykonanych pomiarów adsorpcji w układzie statycznym stwierdzono, że najlepszym adsorbentem triklosanu, chloroksylenolu i chlorofenu jest kompozyt HNT-m 800. Stopień usuwania tych związków z wody był najwyższy przy pH ~ 6. Adsorpcja triklosanu, chloroksylenolu i chlorofenu na kompozycie HNT-m 800 jest efektywna, a desorpcja przebiega w niewielkim stopniu, co oznacza, że związki te ulegają adsorpcji w sposób trwały. Proces adsorpcji triklosanu, chloroksylenolu i chlorofenu przebiega zgodnie z pseudo-drugim modelem kinetycznym. Stałe szybkości adsorpcji rosły w następującej kolejności: chloroksylenol < chlorofen < triklosan. Adsorpcja tych związków zachodzi zgodnie z modelem Langmuira na wielu centrach aktywnych, a stałe równowagi adsorpcji rosną w kolejności: chloroksylenol < chlorofen < triklosan.

Adsorpcja triklosanu, chloroksylenolu i chlorofenu w układzie dynamicznym zachodzi również zgodnie z modelem Langmuira na wielu centrach aktywnych. Pomiar adsorpcji w układzie dynamicznym (ILC) różniły się nieco od tych otrzymanych metodą statyczną, ale potwierdziły kolejność zmian stałych równowag adsorpcji, które rosną w kolejności: chloroksylenol < chlorofen < triklosan.

26.05.2023r.

Data

Laura Frydel

Podpis doktoranta