UO‘K: 661.728

QAMISH SELLYULOZASIDAN MIKROKRISTALLIK SELLYULOZA SINTEZ QILISH VA STRUKTURASINI O‘RGANISH

Umarova Vasila Kabilevna
Toshkent kimyo texnologiya instituti, (t.f.n. dots)
vumarova65@gmail.com 974378977
Baxtiyorov Qodir Botirbek o‘g‘li
Toshkent kimyo texnologiya instituti
(4-kurs talabasi) qodirbekbaxtiyorov@gmail.com 909436856
Primqulov Maxmut Temurovich
Toshkent kimyo texnologiya instituti
(t.f.d. professor) mprimkulov@mail.ru 933746075

Annotatsiya. Qamish sellyulozasidan mikrokristallik sellyuloza sintez qilindi. Maydalik darajasini oshirish uchun termomexanik usulda roll va rafnyor apparatlarida yanchib, maydalandi. Strukturasi rentgenografiya, IQ-spektroskopiya, adsorbsiya izotermasi usullarida o‘rganildi. Olingan sellyuloza va MKS lardan press material tayyorlandi va fizik-mexanik xarakteristikasi aniqlandi.

Kalit so‘zlar: Sellyuloza, qamish, mikrokristallik sellyuloza, polimerlanish darajasi, struktura, kristallik darajasi, press material, adsorbsiya izotermasi, difraksiya burchagi.

Аннотация. Синтезирован микрокристаллическая целлюлоза из камышовой целлюлозы. Для повышения степени помола, термомеханическим методом измельчали на аппаратах ролла и рафинёра. Структурные особенности камышовой целлюлозы и МКЦ изучены методами рентгенография, ИҚ-спектроскопий, изотермы адсорбция пары воды и бензола. Из целлюлозы и МКЦ изготовлены пресс материалы, изучены их физико-механические свойства.

Ключевые слова: Целлюлоза, қамыш, микрокристаллическая целлюлоза, степень полимеризация, структура, степнь кристалличности, пресс материал, изотерма адсорбции паров воды и бензола, угол дифракций.

Annotation. Microcrystalline cellulose was synthesized from reed cellulose. To increase the degree of grinding, they were crushed using a roller and refiner using the thermomechanical method. The structural features of reed cellulose and MCC were studied using X-ray diffraction, IR spectroscopy, and adsorption isotherms of water vapor and benzene. Press materials were made from cellulose and MCC, and their physical and mechanical properties were studied.

ISSN 3030-3907

Key words: Cellulose, reed, microcrystalline cellulose, degree of polymerization, structure, degree of crystalline, press material, adsorption isotherm of water vapor and benzene, diffraction angle.

KIRISH. Qamish sellyulozasini strukturaviy modifikatsiyasi kam o‘rganilgan ob’yektlardan hisoblanadi. O‘zbekistonda qamishdan sellyuloza ishlab chiqarish texnologiyasi o‘rganilgan[1]. Bizning **maqsadimiz** qamish sellyulozasidan mikrokristalli sellyuloza (MKS) sintez qilish usulini ishlab chiqish va strukturasini zamonaviy usullarda o‘rganib, qo‘llash sohasini kengaytirish. Qamish sellyulozasidan birinchi marta MKS sintez qilindi va sellyulozadan pressmaterial olindi.

Paxta va yog‘och sellyuloza tolalaridan nanoo‘lchamli: poroshokli sellyuloza (PS), MKS, va ularning fibrillanganlarini olish kabi strukturaviy modifikatsiyalari ustida so‘ngi yillarda ilmiy tadqiqot ishlari keng olib borilmoqda. Jumladan, yog‘och sellyulozasidan [2], paxta sellyulozadan nanoo‘lchamli sellyuloza olish [3], turli xil o‘simliklar poyasidan [4-6], dorivor o‘simliklar poyasidan [7].

METODLAR VA MATERIALLAR. Qamish sellyulozasini gidrolizlab mikrokristall sellyuloza (MKS) sintez kilindi va kimyoviy, termomexanik usularda maydalandi. Kimyoviy moddalardan sulfat va nitrat kislota, vodorod peroksidi, karbomidformaldegid smolasi (KAFS) foydalanilgan. Olingan sellyuloza va MKS strukturasi quyidagi metodlar yordamida IQ-spektoskopiya, 2000 Furye-IQ-spektrometrida; rentgenografiya, XRD-6100 difraktometrida; adsorbsiya izotermalari (Mak-Ben-Bakra vakumli qurilmasida) o‘rganildi. Qamish va MKS asosida press material olishda laboratoriyada joylashagan 200 tonnali 450°C gacha qizdiradigan press, ularning fizik-mexanik ko‘rsatkichlari ETM – 10 universal test mashinasida bajarildi.

NATIJALAR VA MUHOKAMALAR. Qamish sellyulozasidan mikrokristallik sellyuloza sintez qilish 10% H_2SO_4 bilan 10% N_2O_2 eritmalarini 1:1 nisbatdagi aralashmalaridan olinib, 15, 30, 45, 60 minut davomida gidrolizlandi va olingan namunalarining gidrolizlanish vaqtining fizik-kimyoviy xossalariga ta’siri o‘rganildi. 1-jadvalda keltirilgan.

1-jadval

MKS sintezida, gidroliz vaqtini olingan namunalarining fizik-kimyoviy xossalariga ta’siri [1]

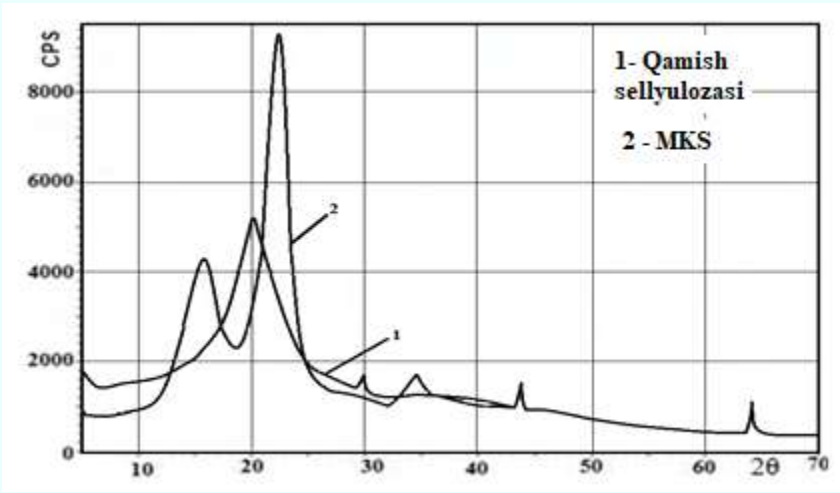
Gidrolizlash vaqti, min	Kul miqdori, %	Namni so‘rishi, %	Suvda bo‘kishi, %	Hajm massasi, g/sm^3	PD
15	2,4	12,4	210	0,39	325
30	1,9	12,0	195	0,45	244

ISSN 3030-3907

45	**1,45**	**11,6**	**181**	**0,52**	**180**
60	1,25	10,2	162	0,71	152

1-jadvaldan ko‘rish mumkinki, gidrolizlash vaqtining ortishi bilan kul miqdori kamaydi, namni so‘rishi 15 daqiqadan 60 daqiqagacha oshirilganda o‘rtacha 11,6% atofida saqlanib qoladi, suvda bo‘kish darajasi esa – 210 dan 162% gacha kamaydi, polimerlanish darajasi (PD) 325 dan 152 gacha pasaydi, xajm massasi – 0,39 dan 0,71 g/sm^3 gacha ortadi. Buning sababi, gidroliz natijasida sellyulozada kristallik qismini ortishi bilan xarakterlanadi, bu esa namunani sorbsiyalanish va polimerlanish darajasini pasayishiga olib kelishi bilan tushuntiriladi. Olingan natijalar asosida qamish sellyulozasidan MKS olishda gidrolizlashning (optimal) maqbul vaqti 45 minut tanlandi.

RENTGENSTRUKTURAVIY ANALIZ. Tadqiqot 2θ = 1 dan 70º gacha sellyuloza uch tekislikda: 2θ = 16; **23**; 44; 64º va MKS – to‘rt tekslikda 2θ = 15; **22**; 34,5; 44; 64º olib borildi (1-rasm).



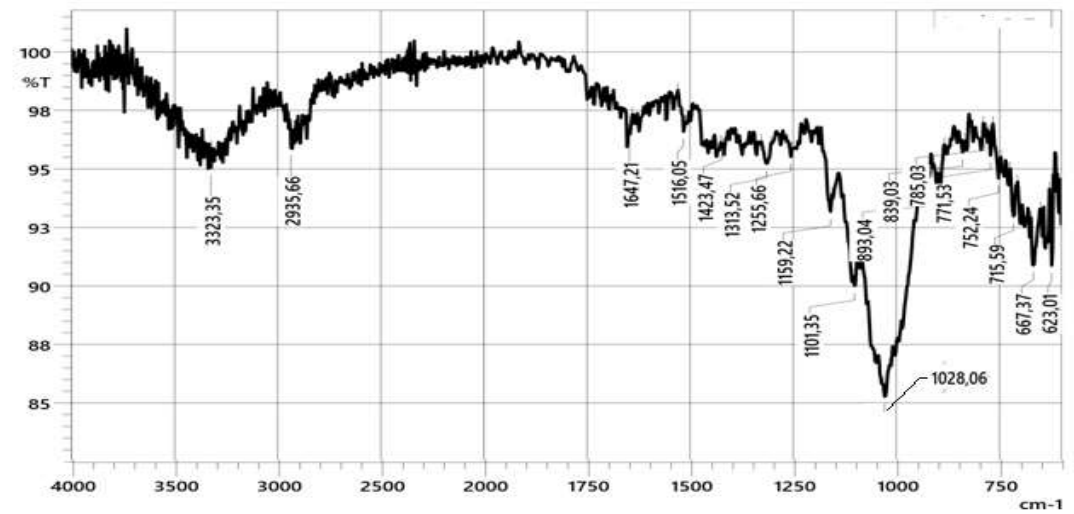
1-rasm. Sellyuloza va MKS rentgenogrammasi

Burchakda namunalarning strukturasidagi o‘zgarishlar kristall tuzilishiga ega bo‘lib, rentgen difraktogrammada turli ko‘rinishdagi kristalli elementlar mavjudligini ko‘rsatadi. Analizlar shuni ko‘rsatadiki, maksimal difraksiya 2θ burchagi 200 tekisligida normal taralish burchagi 20,5-23º ga to‘g‘ri keladi. Kristallik qismini hisoblashda, keng tarqalgan rentgen nurini difraksiyasiga asoslangan Segal tomonidan taklif etilgan emperik formulasidan foydalanildi. Namunalarning 200 tekisligidagi maksimal 2θ difraksiya burchagi: Sellyuloza 2θ = **23**º; MKS 2θ = **22**º. Qamish sellyulozani kristallik darajasi 81,6; MKS – 83,3 ni tashkil etdi.

IQ-spektroskopiya. Spektrlarda sellyuloza namunasining 4000 – 750 sm^{-1} diapozondagi namunalarning farqiga e’tibor qaratildi (2-rasm). Sellyuloza IQ-spektri, asosan, har bir glyukopiranoz zvenosidagi uchta gidroksil gruppasi bilan

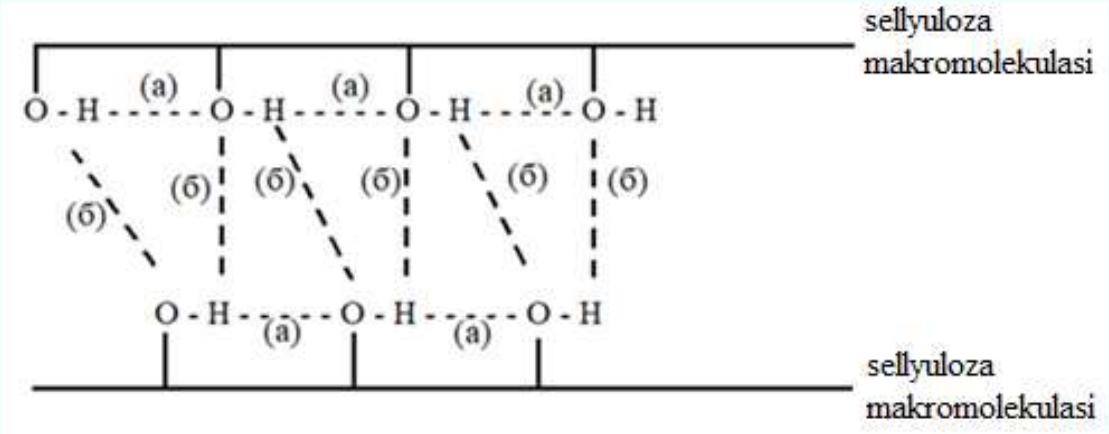
ISSN 3030-3907

aniqlandi. Gidroksil zvenosidagi kislorod va kislorod ko‘prik atomi bilan o‘zaro vodorod bog‘ hosil qilgani uchun bir qator kristallik ustmolekulyar struktura hosil qiladi. Ular sellyuloza strukturasida o‘zaro tartibsiz bog‘langan. Sellyuloza molekulasidagi konfiguratsiyalarning ko‘pligi yutilish polosasini kengaytirishga olib keladi.



2-rasm. Qamish sellyulozasining IQ-spektri

Tavfsifi. Qamish sellyulozasi IQ-spektrini yuqori chastotali qismida (4000-3900 sm^{-1}) vodorod bog‘ hosil qilmagan, valent bog‘li, intensivligi juda yuqori. 3405, 3360, 3305 va 3350 sm^{-1} intervalga kiruvchi 3350,00 va 3334,92 sm^{-1} valent tebranishli ON-gruppalar vodorod bog‘ hosil qilgan va intensivligi yuqori. Quyida sxema ko‘rinishi keltirilgan.



Spektrning 2920,23; 2860,43 sm^{-1} oralig‘idagi sohada (CH_2) guruhining simmetrik valent tebranishlari tufayli yuzasiga kelgan polosalar joylashgan. 2900 sm^{-1} polosa tadqiqot olib borilayotgan namunalar qatorida valent bog‘lar o‘zgarmasa, ichki standart o‘rnida foydalaniladi. Metilenli (- C-H) va metinli (CH_2) 2900 sm^{-1} chastotali, tebranish turi assimmetrik valentli bo‘lib, (OH -, CH - , va CH_2) intensivligi yuqori. Yutilish polosalarini 1647,21 dan 623,01 sm^{-1} qismigacha sellyulozani IQ-spektri uning turli tartiblanish darajasini hisobga olgan holda olib borildi.

ISSN 3030-3907

Sellyulozani yutilish polosasi 1647,21 sm^{-1} qismi undagi kristallangan suv (H-O-H), ya'ni namunani namlik darajasini bildiradi. Sellyulozani yutilish polosasi 1516,05 sm^{-1} - bu uning simmetrik deformasion tebranishli turi hisoblanadi. Sellyulozani yutilish polosasi 1423,47 dan 623,01 sm^{-1} gachasi:

1423,47 – (CH_2OH + (CH) funksional gruppalariga tegishli, assimitrik deformatsiya; 1313,52 – (OH) + (CH) + (CH_2) funksional gruppalariga tegishli; 1255,66 va 1159,22 – (OH) + (CH_2) funksional gruppalariga tegishli; 1101,35 va 1028,06 – (COC) valent tebranish turi, ko'prik funksional gruppalariga tegishli; 893,04 - (COC)-ko'prik + (C_1H)- yelka, funksional gruppalariga tegishli; 839,03 – (=CH_2)-ko'prik, funksional gruppalariga tegishli; 785,03 dan 623,01 gacha – (CC_2O), ($C_2C_1O_5$)-yelka tebranish turi deformatsiya funksional gruppalariga tegishlidir.

Qamish sellyulozasining adsorbsiyalanish izotermasini o'rganishda qutbli suv bug'i va qutbsiz benzol bug'i adsorbsiyalandi. To'yinish adsorbsiyasi 2-jadvalda keltirilgan.

2-jadval

Qamish sellyulozasini adsorbsiyasi

Monoqavat sig'imi, α_m, mol/kg	Solish-tirma yuzasi, S m^2/g	To'yinish adsorbsiyasi, α_s, mol/kg	Mikrog'o-vaklar xajmi $W_0 \cdot 10^3$, m^3/kg	Mezog'o-vaklar xajmi $W_{me} \cdot 10^3$, m^3/kg	To'yinish xajmi $V_s \cdot 10^3$, m^3/kg
Qutbli suv bug'ini adsorbsiyasi					
2.116	137.59	**9.23**	0.116	0.05	0.166
Qutbsiz benzol bug'ini adsorbsiyasi					
0,402	96.82	**1.29**	0.086	0,03	0,115

Namunalarning suv bug'i adsorbsiyasi bo'yicha qilingan natijalaridan shuni ko'rish mumkinki, qutbli molekulaning to'yinish adsorbsiyasi qutbsiz molekulanikiga nisbatan 9 marta yuqori.

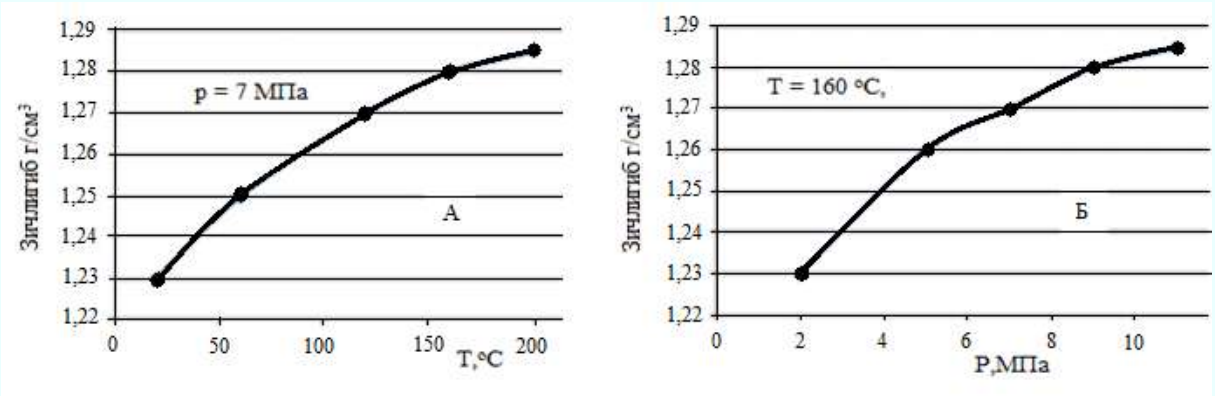
Press material namunalarini olish 20°C dan 200°C gacha va 7 MPa bosimda olib borildi. Olingan namunalarning ko'rinishi 3-rasmda keltirilgan

ISSN 3030-3907



3-rasm. Laboratoriya sharoitida har xil temperatura va bosimda olingan pressmaterial namunalarining tashqi ko‘rinishi.

Press material namunalarining zichligi (4-rasm) va fizik-mexanik ko‘rsatkichlari (3-jadval) bosim va temperaturani ortishi bilan ortib boradi.



4-rasm. Press material namunalar olishda uning zichligiga, temperatura (A) va bosim (B) ning ta’siri

Presslash jarayonida temperatura va bosim oshirilganda namunalarning zichligi ortib borda. Bosim va temperaturani oshirganda zichligi 1,23 dan 1,285 g/sm^3 gacha ortadi (bosimi 7MPa bo‘lganda), bosimini 2 dan 11 MPa gacha oshirganda ham 1,23 1,285 g/sm^3 gacha ortadi (4-rasm).

Presslash jarayonida temperaturani optimal parametrini topish uchun press material namunalarini olishda press material temperaturasini 20^{o}C dan 200^{o}C gacha oshirildi. Sellyulozadan pressmaterial namunalarni olishda temperaturaning fizik-mexanik ko‘rsatkichlariga ta’siri o‘rganildi. 3-jadvalda namunalarning egilishga chegarali qarshilik kuchi va egilishga qarshilik moduli aniqlandi. Namunalarning egilishga chegarali qarshilik kuchi, σ,N va egilishga qarshilik moduli E_1, MPa quyidagi formulalar yordamida hisoblandi:

$$\sigma = \frac{3Fl}{2bh^2},$$

bu yerda: F – sinish vaqtidagi kuch, N; l - sinaladigan qurilmani tayanchlari orasidagi masofa, mm; b – namunani eni, *mm;* h – namuna qalinligi, *mm.*

$$E_1 = \frac{F(F_2 - F_1)}{4bh^3(S_2 - S_1)},$$

bu yerda: b –namuna eni, mm; h – namuna qalinligi, mm; $F_2 - F_1$ belgilangan yukni ortishi, N; $S_2 - S_1$ - egilishni ortishi, grafik bo‘yicha 0,1 mm aniqlikda aniqlanadi, N/mm.

ISSN 3030-3907

3-jadval

Sellyulozadan pressmaterial namunalarni olishda temperaturaning fizik-mexanik ko‘rsatkichlariga ta’siri (massa tarkibidagi yelim (KAFS) miqdori 20%, parafin 2,5%)

*T,°C	Egilishga chegarali qarshilik kuchi σ, N	Egilishga qarshilik moduli, E_1, MPa
20	140	0,31
80	210	1,04
120	**230**	**1,81**
200	240	1,86

Temperaturani oshishi bilan olingan namunalarning mustaxkamligi ham ortib bordi. Egilishga chegarali qarshilik kuchi 140 N dan 240 N, ya’ni 100 N ga, egilishga qarshilik moduli 0,31 MPa dan 1,81 Mpa gacha, - 6 barobar oshadi. Optimal temperatura etib 120°C tanlandi.

XULOSA:

1. Qamish sellyulozasidan mikrokristallik sellyuloza sintez qilindi.
2. Qamish sellyuloza va MKS larini strukturasi o‘rganildi.
3. Qamish sellyulozasidan press material namunalar olindi, yog‘och qipig‘idan press material olib solishtirish uchun xossalari GOST 10633-2018 bo‘yicha sinaldi, mos kelishi ko‘rsatildi.

FOYDALANILGAN ADABIYOTLAR RO‘YXATI

1. Raxmonberdiyev G‘., Primqulov M. Qamish syellyulozasi texnologiyasi. Toshkent: “Tafakur” nashriyoti 2020. – 168 b.

2. Котельникова Н.Е., Петропавловский Г.А., Погодина Т.Е. Исследование структуры и хроматографических свойств микрокристаллической целлюлозы, полученной из древесины берёзы // Химия древесины. 1980. № 6. С 3 – 12.

3. Атаханов А.А. Получение, структура, свойства и технология производства хлопковой, микрокристаллической и наноцеллюлозы. Автореферат. Докторской диссертации. Ташкент. 2016 г.

4. Кочева Л.С., Карманов А.П. Новые способы получение МКЦ //Химия ростительного сырья. Выпуск №2. Казань. 2014г. С.- 140.

5. Khamdamova D., Umarova V., Primkulov M., Khusenov A. Study on the microcrystalline cellulose from medicinal plants. *E3S Web of Conferences*. 434. 03038. (2023)

ISSN 3030-3907

6. Момзякова К.С., Дебердеев Т.Р., Вершинин М.С., Лексин В.В., Момзяков А.А. // Химия ростительного сырья. Выпуск №3. Казань. 2019г. С.-15-21.

7. Hamdamova D.Sh. Dorivor o‘simliklardan farmasevtika maqsadlari uchun mikrokristallik syellyuloza olish texnologichsini ishlab chiqish. texnika fanlari bo‘yicha falsafa doktori (PhD) dissertatsiyasi avtoreferati. Tashkent. 2022 y.

ISSN 3030-3907