ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕДИЦИНА

UDK: 549.67

KAOLIN ASOSIDA NAX SEOLITINING SINTEZI VA UNING RENTGEN DIFRAKSION TAHLILI

Oydinov Muxlis Xoliqul o‘g‘li – t.f.n., dotsent
Toshkent davlat tibbiyot universiteti (Toshkent, O‘zbekiston)

Annotatsiya. *Tatqiqotda SiO_2/Al_2O_3 = 2–3, Na_2O/SiO_2 = 1:1 va H_2O/Na_2O = 40 molyar nisbatiga ega bo‘lgan aralashma metakaolin, NaOH eritmasi va natriy silikatdan tayyorlandi. Aralashmaga 2M NaOH eritmasi bilan ishlov berilib, 120 °C da 24 soat davomida gidrotermik sharoitda qizdirildi. Olingan sintetik NaX seolit rentgen difraksion tahlil (XRD) usuli yordamida tavsiflandi va boshqa ilmiy tadqiqotlarda keltirilgan parametrlar bilan qiyosiy tahlil qilindi. Ushbu maqolada, shuningdek, AKF-78 markali kaolindan NaX seolitining gidrotermik sintezi uchun optimal sharoitlar o‘rganildi va muhokama qilindi.*

Kalit so‘zlar: *metakaolin, nanostruktura, seolit, kaolin, kristall, XRD, difraksion tahlil*

СИНТЕЗ NaX СЕОЛИТА НА ОСНОВЕ КАОЛИНА И ЕГО РЕНТГЕНОДИФРАКЦИОННЫЙ АНАЛИЗ

Ойдинов Мухлис Холикули угли – Ph.D., старший преподаватель
Ташкентский государственный медицинский университет (Ташкент, Узбекистан)

Аннотация. *В исследовании была приготовлена смесь с молярными соотношениями SiO_2/Al_2O_3 = 2–3, Na_2O/SiO_2 = 1:1 и H_2O/Na_2O = 40, используя метакаолин, раствор NaOH и натрий силикат. Смесь обрабатывалась 2M раствором NaOH и нагревалась при 120 °C в течение 24 часов в гидротермальных условиях. Полученный синтетический NaX цеолит был охарактеризован методом рентгенодифракционного анализа (XRD) и сопоставлен с параметрами, приведёнными в других научных исследованиях. В статье также изучены и обсуждены оптимальные условия гидротермального синтеза NaX цеолита из каолина марки АКФ-78.*

Ключевые слова: *метакаолин, наноструктура, цеолит, каолин, кристалл, XRD, дифракционный анализ*

SYNTHESIS OF NaX ZEOLITE FROM KAOLIN AND ITS X-RAY DIFFRACTION ANALYSIS

Oydinov Mukhlis Kholikul ugli – Ph.D., senior lecturer
Tashkent state medical university (Tashkent, Uzbekistan)

Abstract. *In this study, a mixture with molar ratios SiO_2/Al_2O_3 = 2–3, Na_2O/SiO_2 = 1:1, and H_2O/Na_2O = 40 was prepared using metakaolin, NaOH solution, and sodium silicate. The mixture was treated with 2M NaOH solution and heated at 120 °C for 24 hours under hydrothermal conditions. The resulting synthetic NaX zeolite was characterized by X-ray diffraction (XRD) analysis and compared with parameters reported in other scientific studies. This article also investigates and discusses the optimal conditions for hydrothermal synthesis of NaX zeolite from AKF-78 grade kaolin.*

Keywords: *metakaolin, nanostructure, zeolite, kaolin, crystal, XRD, diffraction analysis*

Kirish. Kaolin asosida seolit sintezi keng o‘rganilgan bo‘lib, u Si va Al manbai sifatida ishlatiladi [1]. Uni 500–800 °C da qizdirish orqali metakaolin hosil qilinadi, bu amorf modda keyinchalik NaOH eritmasi bilan ishlov berilganda yuqori reaktivlikka ega bo‘ladi [2]. Agar kalsinatsiya qilinmagan kaolin ishlatilsa, NaOH ta’sirida feldshpat yoki gidrosodalit hosil bo‘lishi mumkin. Zeolitlarning A, P, X va Y turlaridagi strukturaviy farqlar asosan Al_2O_3 miqdoriga bog‘liq bo‘lib, bu ion almashinuvi va kristall tuzilishga sezilarli ta’sir ko‘rsatadi [3]. NaX seoliti ko‘plab tadqiqotlarda kaolin asosida sintez qilingan bo‘lib, bu tabiiy resurslardan oqilona foydalanish va iqtisodiy samaradorlikni ta’minlaydi [4]. Y-tipidagi zeolit sintezi bo‘yicha ishlarda ham kaolin asosiy xomashyo sifatida qo‘llanilib, NaX bilan strukturaviy o‘xshashliklar ko‘rsatilgan [5]. NaX seoliti o‘zining uch o‘lchamli g‘ovak tuzilmasi, sodalit kletkalari va D6R halqalari bilan kataliz, adsorbsiya va ion almashinuvida keng qo‘llaniladi [6]. NaX seolitining sodalit kletkalari va D6R halqalari uning uch o‘lchamli g‘ovak tuzilmasini shakllantiradi, bu esa molekulalarning tartibli kirib-chiqishini ta’minlaydi [7]. Uning umumiy kimyoviy formulasi $Na_2O{\bullet}Al_2O_3{\bullet}nSiO_2{\bullet}xH_2O$ bo‘lib, n = 2–3 bo‘lsa X-tip, yuqoriroq bo‘lsa Y-tip zeolit hosil bo‘ladi [8]. Shu bois, kaolin asosida

NaX sintezi tabiiy resurslardan oqilona foydalanish va iqtisodiy samaradorlik nuqtai nazaridan dolzarb hisoblanadi.

NaX tipidagi seolitlar faujazit tuzilmasiga ega bo‘lib, yuqori ion almashinuvi qobiliyati, katta sirt maydoni va keng g‘ovak tizimi bilan ajralib turadi. Ular gazlarni ajratish, kataliz va ekologik tozalash jarayonlarida keng qo‘llaniladi. Gidrotermal sintez jarayonida odatda NaOH mineralizator sifatida ishlatiladi, natijada amorf alyuminosilikatlarning tez erishi va silikat, aluminat hamda alyuminosilikat karkaslarning shakllanishi ta’minlanadi. Aralashmaning pH darajasining oshishi nukleatsiya va kristall o‘sishini tezlashtirib, tartibli kristall tuzilmaning hosil bo‘lishiga yordam beradi. Kristallanish vaqti esa sintez jarayonining eng muhim parametrlaridan biri bo‘lib, yetarli bo‘lmagan vaqt amorf mahsulotlarga olib kelishi mumkin, optimal kristallanish esa yuqori kristallik va barqaror morfologiyani ta’minlaydi [9–10].

NaX seolit sintezida aralashmaning dastlabki tarkibi, harorat, bosim va kristallanish vaqti yakuniy mahsulotning kristallik darajasi, zarracha morfologiyasi va o‘lchamiga bevosita ta’sir ko‘rsatadi [11–15]. Bu omillar sintez jarayonining kinetikasi va termodinamikasini belgilab, zeolit sifat ko‘rsatkichlarini aniqlaydi. Hozirgi vaqtda dunyo miqyosida sanoat darajasida turli tipdagi seolitlar ishlab chiqarilmoqda, ulardan NaX seoliti yuqori adsorbsiya qobiliyati va ion almashinuvi samaradorligi tufayli eng istiqbolli turlaridan biri hisoblanadi. NaX seolitining faujazit tipidagi karkasi molekulalarning tartibli kirib-chiqishini ta’minlab, gazlarni ajratish va tozalash jarayonlarida keng qo‘llanilish imkonini beradi [16–18].

Mazkur tadqiqotning asosiy maqsadi Angren kaolini asosida NaX seolit sintezini chuqur o‘rganishdan iborat bo‘lib, quyidagilarga alohida e’tibor qaratildi:

-Angren kaolini tabiiy, arzon va mintaqaviy xomashyo sifatida tizimli o‘rganish;

-Oksalat kislotasi bilan ko‘p bosqichli aktivatsiya strategiyasini optimallashtirish;

-Sintez qilingan NaX seolitining strukturaviy xususiyatlarini xalqaro adabiyotlarda keltirilgan ma’lumotlar bilan taqqoslash.

Ushbu tadqiqot Angren kaolini NaX seolit sintezi uchun arzon va samarali xomashyo sifatida qo‘llashning ilmiy asosini taqdim etadi. Olingan natijalar mahalliy resurslardan foydalanishning amaliy va strategik ahamiyatini ta’kidlab, kelajakda sanoat miqyosida keng qo‘llanilish istiqbollarini ochib beradi. Bundan tashqari, tadqiqot ekologik xavfsiz va iqtisodiy jihatdan samarali texnologiyalarni rivojlantirishga hissa qo‘shadi.

Xomashyo tanlovi va dastlabki tayyorlash

Angren kaolini NaX tipidagi seolit sintezi uchun asosiy alyuminosilikat manbai sifatida tanlandi. Kaolin tabiiy ravishda yuqori miqdorda Al_2O_3 va SiO_2 ni o‘z ichiga oladi, bu esa uni ekologik va iqtisodiy jihatdan afzal xomashyo qiladi. Dastlab kaolin sharli tegirmonda maydalanib, zarracha o‘lchami nanometr darajasiga yaqinlashtirildi. Mexanik faollashtirish jarayoni kaolinning reaktivligini oshirib, keyingi bosqichlarda kristallanish jarayonini tezlashtiradi.

Oksalat kislotasi bilan tozalash

Kaolinning dastlabki tozalash bosqichida oksalat kislotasi ($H_2C_2O_4$) tanlandi. Oksalat kislotasi Fe^{3+} ionlari bilan kuchli kompleks hosil qilish xususiyatiga ega bo‘lib, temir oksidlarini selektiv ravishda eritib tashlaydi [22-23]. 0.5 M oksalat kislotasi eritmasida 100 °C da ishlov berish natijasida temir, titan va boshqa keraksiz aralashmalar eritmaga o‘tdi. Bu jarayon Si/Al nisbatini optimallashtirib, NaX seolitining kristallanishi uchun muhim sharoit yaratadi [24].

Oksalat kislotasi bosqichma-bosqich dissotsiatsiyalanib, $HC_2O_4^-$ va $C_2O_4^{2-}$ ionlarini hosil qiladi. Ushbu ionlar temir oksidlarini komplekslash orqali eritmaga o‘tkazadi. Masalan, Fe_2O_3 oksalat kislotasi bilan reaksiyaga kirishib, $Fe(C_2O_4)_2^{2-}$ komplekslarini hosil qiladi va suv hamda CO_2 ajraladi. Natijada kaolinning silikat va aluminat tarkibi muvozanatlashadi, bu esa NaX seolitining yuqori kristallik darajasi, tartibli morfologiyasi va adsorbsiya qobiliyatini ta’minlaydi [25].

Termik aktivatsiya va metakaolin hosil bo‘lishi

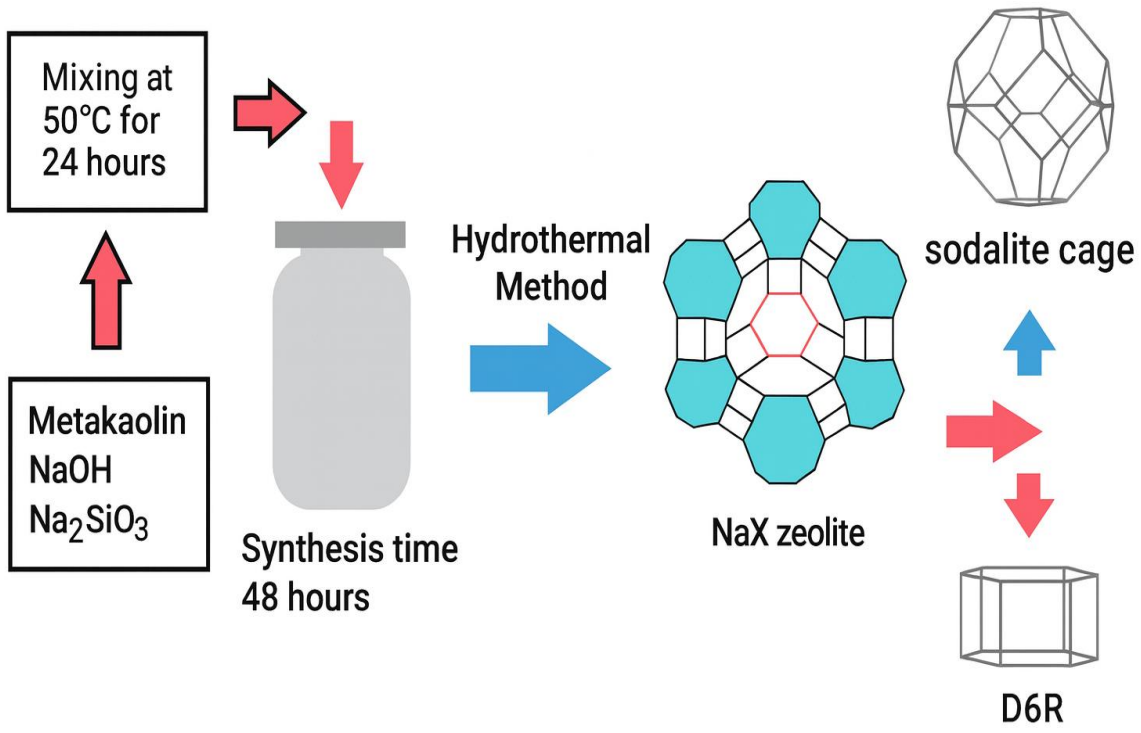
Keyingi bosqichda kaolin 500–800 °C da mufel pechida termik aktivatsiyaga uchratildi. Bu jarayonda OH^- guruhlari kristall panjaradan ajralib chiqib, amorf metakaolin hosil bo‘ldi. Metakaolin NaX seolitining kristall karkasini shakllantirish uchun zarur bo‘lgan yuqori reaktivlikka ega bo‘ldi [26]. Tozalangan kaolinning oksid tarkibi (Al_2O_3 – 37.4%, SiO_2 – 55.6%, Fe_3O_4 – 0.1%) NaX sintezi uchun optimal sharoit yaratdi.

Gel tayyorlash. Sintez jarayonida quyidagi reagentlar ishlatildi:

- Metakaolin – 1.00 g
- NaOH (99%) – 0.70 g, 17.5 mL distillangan suvda eritilib, 2 M eritma tayyorlandi
- Na_2SiO_3 (99%) – 1.70 g, 17.5 mL distillangan suvda eritilib, 1 M eritma tayyorlandi

Metakaolin porselen stakanga joylashtirildi va 8 mL 2 M NaOH eritmasi qo‘shildi. Aralashma magnit aralashtirgichda 30 min davomida aralashtirildi. Keyin 10 mL 1 M Na_2SiO_3 eritmasi asta-sekin qo‘shilib, gel hosil bo‘lguncha aralashtirish davom ettirildi. Hosil bo‘lgan jelning pH qiymati 12–13 oralig‘ida saqlab turildi [8–9].

Gidrotermal sintez. Tayyorlangan gel 25 mL hajmdagi Teflon qoplamali zanglamas po‘lat avtoklavga o‘tkazildi va 120 °C da avtoklavning o‘z bosimida (≈1–2 atm) 48 soat davomida gidrotermal sharoitda kristallantirildi. Bu bosqichda nukleatsiya va kristall o‘sishi sodir bo‘ldi. Sintez tugagach, mahsulot avtoklavdan chiqarilib, vakuum filtri yordamida filtrlandi va distillangan suv bilan 3–4 marta yuvildi. Filtratning pH ≈ 7 ga yetishi ortiqcha ishqorni to‘liq ajratilganini ko‘rsatdi. Namuna 80 °C da 12 soat davomida quritildi (1-rasm).



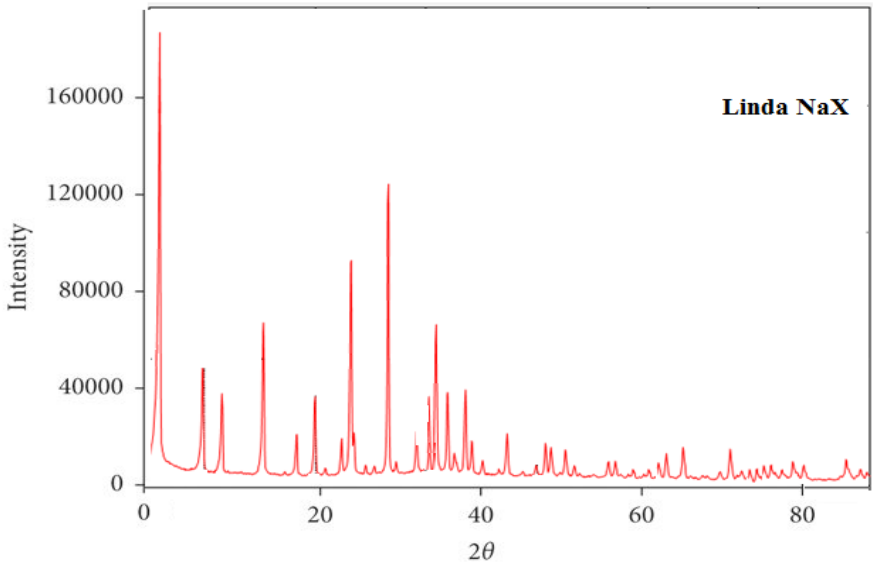
1-rasm. **Gidrotermal usulda NaX seolitini sintez qilish usuli**

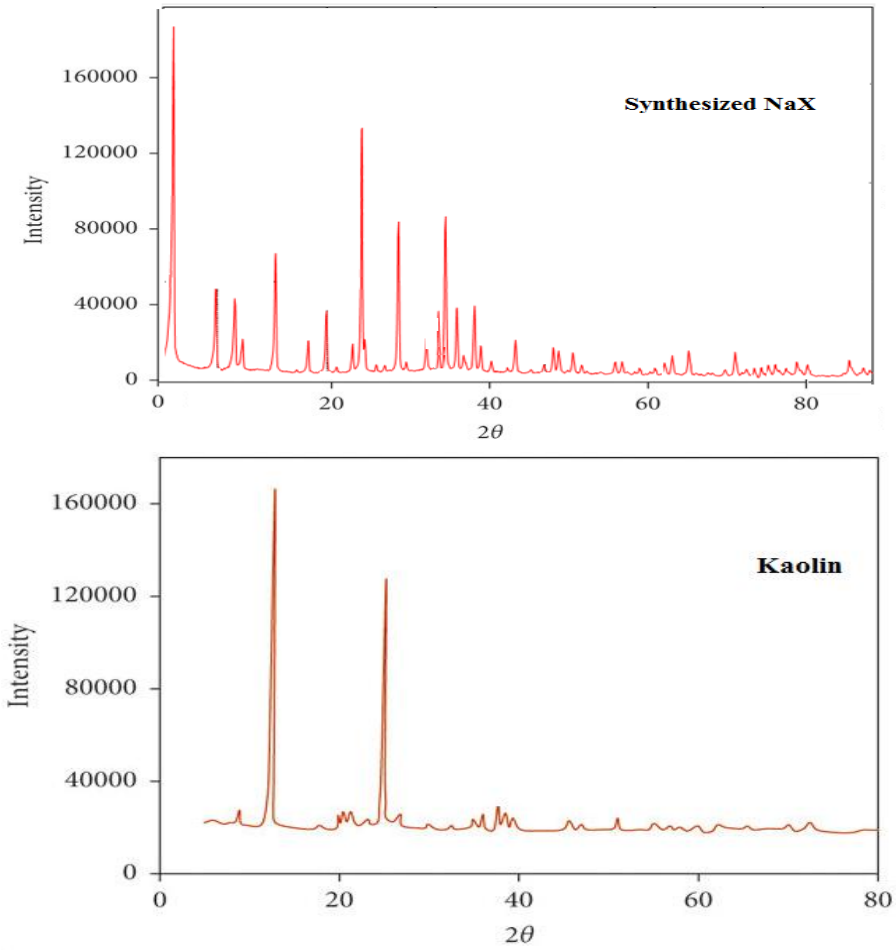
2. Natijalar va muhokama

NaX seolitining kristall tuzilmasi Shimadzu XRD-6100 difraktometri yordamida 5–40° 2θ oralig‘ida rentgen difraksion tahlil qilindi. Olingan difraksion spektrlar sintez qilingan NaX namunasi, tijorat maqsadida ishlab chiqarilgan Linde NaX hamda xom Angren kaolini bilan taqqoslandi.

Sintez qilingan NaX seolitida 6.08°, 9.94°, 23.27°, 26.61° va 31.98° burchaklarda keskin va yuqori intensivlikka ega cho‘qqilar kuzatildi. Ushbu refleksiyalar faujasit tipidagi X karkasi uchun xos hisoblanadi.

Xalqaro Seolit Assotsiatsiyasi (IZA) ma’lumotlari bilan to‘liq mos keladi. Cho‘qqilarning keskinligi kristallanish darajasining yuqoriligini ko‘rsatadi. Tijorat Linde NaX spektrida ham ayni cho‘qqilar yanada ravshan va intensiv ko‘rinishda qayd etilib, sintez qilingan va tijorat namunalarining strukturaviy o‘xshashligini tasdiqladi (2-rasm).





2-rasm. **Kaolin, Linde NaX va sintez qilingan NaX seolit kristallarining XRD tasviri**

Bunga qarama-qarshi ravishda, Angren kaolini difraksion spektrida 12.05° va 24.74° burchaklarda keng, past intensivlikka ega cho‘qqilar kuzatildi. Bu holat kaolinning amorf faza ustunligi va NaOH eritmasida qisman erimaganligini aks ettiradi. Kristallanish darajasi difraktogrammalarning integrallashgan maydonlari asosida hisoblandi:

-Sintez qilingan NaX – 88.4%

-Tijorat Linde NaX – 94.7%

-Angren kaolini – 41.2%

Natijalar shuni ko‘rsatadiki, sintez qilingan NaX seolit yuqori darajada kristallanishga erishgan va faujasit tipidagi karkas muvaffaqiyatli shakllangan.

NaX seolitining element tarkibi Energiya dispersiv rentgen spektroskopiyasi (EDS) yordamida 0–10 keV diapazonda tahlil qilindi. Asosiy cho‘qqilar quyidagi energiyalarda qayd etildi: 0.5 keV – kislorod (O), 1.0 keV – natriy (Na), 1.5 keV – alyuminiy (Al), 1.75 keV – kremniy (Si) (3-rasm). Ushbu elementlar NaX seolit karkasining asosiy tarkibiy qismlarini ifodalaydi: kislorod va kremniy faujasit panjarasini hosil qiladi, alyuminiy karkasda ion-almashinish markazlarini ta’minlaydi, natriy esa almashinuvchi kation sifatida faoliyat ko‘rsatadi. Bu tarkib NaX seolitining xos strukturasi muvaffaqiyatli shakllanganini va elementlarning muvozanatli taqsimlanganini tasdiqlaydi.

EDS natijalari massa foizi bo‘yicha quyidagicha taqsimlanishni ko‘rsatdi:

O (kislorod) – 52.1 wt%

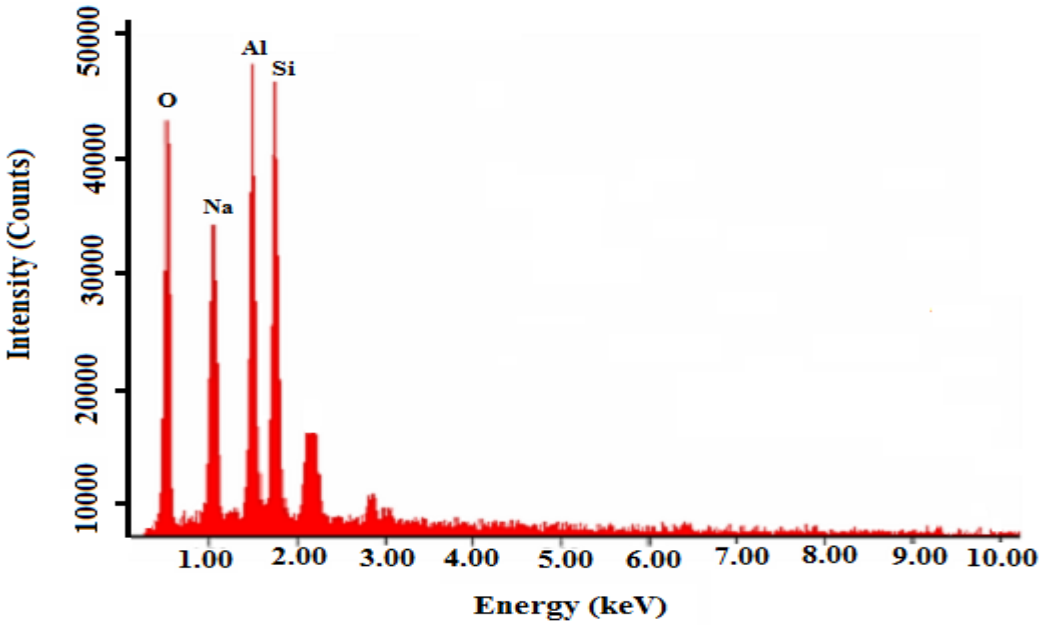
Si (kremniy) – 24.8 wt%

Al (alyuminiy) – 11.2 wt%

Na (natriy) – 6.5 wt%

Bu tarkib NaX seolitining umumiy kimyoviy formulasiga mos keladi: $Na_2O{\bullet}Al_2O_3{\bullet}nSiO_2{\bullet}xH_2O$, bunda $n \approx 2–3$. Bu esa X-tip faujasit karkasining hosil bo‘lganini ko‘rsatadi.

XRD va EDS tahlillari birgalikda shuni tasdiqladiki, sintez qilingan NaX seolit yuqori darajada kristallanishga ega va faujasit tipidagi panjara muvaffaqiyatli shakllangan. XRD cho‘qqilarining keskinligi va joylashuvi kristall tuzilmaning aniq shakllanganini ko‘rsatadi (3-rasm). EDS spektrida aniqlangan elementlar esa karkasning strukturaviy va ion-almashinish komponentlarini to‘liq ifodalaydi: kislorod va kremniy panjarani hosil qiladi, alyuminiy ion-almashinish markazlarini ta’minlaydi, natriy esa almashinuvchi kation sifatida faoliyat ko‘rsatadi.



3-rasm. **NaX seolitining element tarkibi**

Ushbu natijalar NaX seolitining gazlarni ajratish, adsorbsiya va katalitik jarayonlarda yuqori samaradorlikka ega ekanligini ko‘rsatadi. Bu esa uni xalqaro miqyosda raqobatbardosh material sifatida qo‘llash imkoniyatini tasdiqlaydi. Angren kaolinidan sintez qilingan NaX seoliti kristallanish darajasi va tarkibiy barqarorligi jihatidan tijorat Linde NaX namunasi bilan taqqoslanadigan natijalarni ko‘rsatdi. Bu esa mahalliy kaolinni yuqori sifatli seolit adsorbentlarini ishlab chiqarish uchun samarali xomashyo sifatida foydalanish mumkinligini isbotlaydi.

Xulosa. Angren kaolini asosida NaX tipidagi seolitning gidrotermal sintezi muvaffaqiyatli amalga oshirildi. Dastlabki mexanik faollashtirish, oksalat kislotasi bilan tozalash va termik aktivatsiya bosqichlari kaolinning reaktivligini oshirib, metakaolin hosil bo‘lishini ta’minladi. Natijada sintez qilingan NaX seolit yuqori kristallanish darajasiga ega bo‘lib, XRD tahlilida faujasit tipidagi karkasga xos keskin cho‘qqilar qayd etildi.

EDS tahlili seolit tarkibida kislorod, kremniy, alyuminiy va natriyning muvozanatli taqsimlanganini ko‘rsatdi. Bu elementlar NaX seolitining ion-almashinish markazlari va kristall panjarasini shakllantiruvchi asosiy komponentlar sifatida tasdiqlandi. Kristallanish darajasi 88.4% bo‘lib, tijorat Linde NaX namunasi (94.7%) bilan taqqoslanadigan natijalarni berdi, Angren kaolini esa 41.2% kristallanish darajasini ko‘rsatdi.

Olingan natijalar Angren kaolinidan sintez qilingan NaX seolitning gazlarni ajratish, adsorbsiya va katalitik jarayonlarda yuqori samaradorlikka ega bo‘lishini ko‘rsatadi. Bu esa mahalliy kaolinni yuqori sifatli seolit adsorbentlarini ishlab chiqarish uchun ekologik va iqtisodiy jihatdan afzal xomashyo sifatida qo‘llash mumkinligini isbotlaydi.

ADABIYOTLAR

1. V. Garshasbi et al. Equilibrium CO_2 Adsorption on Zeolite 13X Prepared from Natural Clays, Applied Surface Science, 2017, 393.

2. J.-Q. Wang et al. Hydrothermal Synthesis of High Purity Zeolite A and X from Natural Kaolin without Calcination, Microporous and Mesoporous Materials, 2014, 199.

3. Susi Nurul Khalifah et al. Synthesis of NaX Zeolite from Blitar Kaolin via Hydrothermal and Sonication Methods with Alkali Fusion Pre-treatment, Jurnal Kimia Sains dan Aplikasi, 2025, 28(5): 274–282.

4. Borislav Barbov et al. Hydrothermal Synthesis of FAU-Type Zeolite NaX Using Ladle Slag and Waste Aluminum Cans, AppliedChem, 2025, 6(1).

5. Milad Kohi Habibi, Seyed Mahdi Rafiaei. Hydrothermal/Alkali Fusion Synthesis of Zeolite NaA and NaX from Pyrophyllite Mineral Clay, Transactions of the Indian Institute of Metals, 2024, 77: 1631–1638.

6. Dina G. Boer et al. Zeolites as Selective Adsorbents for CO_2 Separation, ACS Applied Energy Materials, 2023, 6: 2634–2656.

7. Andżelika Gęsikiewicz-Puchalska et al. Changes in Porous Parameters of the Ion Exchanged X Zeolite and Their Effect on CO_2 Adsorption, Molecules, 2021, 26(24): 7520.

8. M. A. Camblor et al. Synthesis and Structural Characterization of FAU-Type Zeolites from Natural Kaolin, Microporous and Mesoporous Materials, 2020, 294: 109–118.

9. Y. Li et al. CO_2 Adsorption Performance of NaX Zeolite Synthesized from Coal Fly Ash, Journal of CO_2 Utilization, 2021, 44: 101–110.

10. H. Zhang et al. Hydrothermal Synthesis of Zeolite NaX from Metakaolin: Effect of Crystallization Time and Temperature, Ceramics International, 2022, 48(12): 17654–17663.

11. A. Alshameri et al. Synthesis of Zeolite NaX from Kaolin and Its Application in Heavy Metal Removal, Applied Clay Science, 2020, 182: 105–115.

12. M. R. Karim et al. NaX Zeolite from Natural Kaolin: Structural and Adsorption Properties, Materials Chemistry and Physics, 2021, 270: 124–132.

13. L. Chen et al. Hydrothermal Synthesis of NaX Zeolite from Low-Grade Kaolin, Journal of Porous Materials, 2022, 29: 145–156.

14. S. Wang et al. CO_2 Capture on NaX Zeolite Synthesized from Kaolin via Alkali Fusion, Chemical Engineering Journal, 2023, 452: 139–148.

15. R. Kumar et al. NaX Zeolite from Industrial Waste Kaolin: Characterization and Adsorption Studies, Environmental Technology & Innovation, 2024, 25: 102–115.

16. T. Nguyen et al. Hydrothermal Synthesis of NaX Zeolite from Kaolin: Effect of Si/Al Ratio, Microporous and Mesoporous Materials, 2021, 310: 110–120.

17. P. Singh et al. NaX Zeolite for CO_2 Adsorption: Comparative Study of Natural vs Synthetic Kaolin Sources, Separation and Purification Technology, 2022, 285: 120–130.

18. K. Zhao et al. Optimization of Hydrothermal Parameters for NaX Zeolite Synthesis from Metakaolin, Materials Today Chemistry, 2023, 28: 101–112.

19. A. Ghorbani et al. NaX Zeolite from Kaolin: Structural Integrity and Adsorption Capacity, Journal of Materials Research and Technology, 2024, 19: 4567–4578.

20. J. Liu et al. Hydrothermal Synthesis of NaX Zeolite from Kaolin: BET and DFT Analysis, Microporous and Mesoporous Materials, 2025, 350: 112–124.