УДК: 549.67

ANGREN KAOLINI ASOSIDA NaX SEOLITI SINTEZI VA UNING IQ SPEKTR TAHLILI

Oydinov Muxlis Xoliqul o‘g‘li – Ph.D., assistent
Toshkent davlat tibbiyot universiteti (Toshkent, O‘zbekiston)

Annotatsiya. *Gidrotermal sintez usuli bilan sintetik NaX seoliti sintez qilindi. 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 tayyorlash uchun metakaolin, NaOH eritmasi va natriy silikatdan foydalanib, unga 2M NaOH eritmasi bilan ishlov berish va 120 ° C da 24 soat davomida qizdirilgan. Olingan sintetik seolit FTIR spektroskopiyasi bilan tavsiflandi va boshqa ilmiy tadqiqotlar parametrlari bilan qiyosiy tahlil qilindi. Ushbu maqolada, shuningdek, AKF-78 markali kaolindan NaX seolitining gidrotermik sintezi uchun optimal sharoit o‘rganiladi va muhokama qilinadi.*

Kalit so‘zlar: *metakaolin, nanostruktura, seolit, kaolin, kristall, spektroskopiya*

СИНТЕЗ ЦЕОЛИТА NaX НА ОСНОВЕ АНГРЕНСКОГО КАОЛИНА И ЕГО АНАЛИЗ ИК-СПЕКТРА

Ойдинов Мухлис Халикулович – Ph.D., ассистент
Ташкентский государственный медицинский университет (Ташкент, Узбекистан)

Аннотация. *Синтетический цеолит NaX был синтезирован методом гидротермального синтеза. Для приготовления смеси с молярным соотношением SiO_2/Al_2O_3 = 2-3, Na_2O/SiO_2 = 1:1 и H_2O/Na_2O = 40 использовались метакаолин, раствор NaOH и силикат натрия. Смесь обработали 2М раствором NaOH и нагревали при 120 °C в течение 24 часов. Полученный синтетический цеолит был охарактеризован методом FTIR-спектроскопии и проведен сравнительный анализ с параметрами других научных исследований. В данной статье также изучены и обсуждены оптимальные условия гидротермального синтеза цеолита NaX из каолина марки АКФ-78.*

Ключевые слова: *метакаолин, наноструктура, цеолит, каолин, кристалл, спектроскопия*

SYNTHESIS OF NAX ZEOLITE BASED ON ANGREN KAOLIN AND ITS FTIR SPECTRAL ANALYSIS

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

Annotation. *Synthetic NaX zeolite was synthesized using the hydrothermal synthesis method. To prepare a mixture with a molar ratio of SiO_2/Al_2O_3 = 2-3, Na_2O/SiO_2 = 1:1, and H_2O/Na_2O = 40, metakaolin, NaOH solution, and sodium silicate were used. The mixture was treated with a 2M NaOH solution and heated at 120°C for 24 hours. The obtained synthetic zeolite was characterized using FTIR spectroscopy and compared with other scientific research parameters. This article also investigates and discusses the optimal conditions for the hydrothermal synthesis of NaX zeolite from AKF-78 grade kaolin.*

Key words: *metakaolin, nanostructure, zeolite, kaolin, crystal, spectroscopy*

Kirish. Seolitlar g‘ovakli kristalli gidratlangan alyuminosilikatlar bo‘lib, ochiq ramka tuzilishi va muntazam g‘ovak geometriyasi bilan tavsiflanadi. Ular odatda natriy silikat va natriy alyuminat eritmalaridan sintezlanadi yoki tabiiy xom ashyolardan olinadi. Xom ashyoning tabiati va tozaligi olingan seolit namunalarining sifatiga sezilarli darajada ta’sir qiladi. Seolitlarni sintez qilish bentonit, kalsinlangan smektit, mordenit, kaolin, ko‘p qatlamli vulqon jinslari va hatto sanoat chiqindilari kabi materiallardan foydalangan holda murakkab va xilma-xil jarayonlarni o‘z ichiga oladi [1].

Tabiiy xomashyodan seolitlarni olish bo‘yicha tadqiqotlar ancha oldin boshlangan. Dastlab sodalit gidrotermik usulda kremniy oksidi va kaolinni NaOH bilan ishlov berish orqali sintez qilingan. Bundan tashqari, kaolin yoki montmorillonit Al_2O_3 minerallari bilan birga NaOH bilan 100°C da qizdirilganda sodalit hosil bo‘lishi kuzatilgan [2]. Organik birikmalar ishtirokidagi reaksiyalar uchun katalizator sifatida foydalanishda kaolin kislota bilan ishlanadi. Uning katalitik faolligiga sirt zaryadining roli va kislota bilan ishlov berish natijasida yuzaga keladigan sirt xususiyatlarining sezilarli o‘zgarishi ta’sir qiladi. Kaolin yuqori haroratgacha qizdirilganda, gidratsiya suvining yo‘qolishi gil mineral qatlamlari orasidagi masofaning qisqarishiga olib keladi, bu esa gil katalizatori sirtining o‘zgarishiga olib keladi [3]. Seolitlarni o‘z ichiga olgan adsorbentni sintez bosqichida ishlatiladigan bog‘lovchi material kerakli shakl va mexanik mustahkamlikni ta’minlashga xizmat qiladi. Shuningdek, u adsorbsiyalangan molekulalarning

adsorbsion-desorbsiya jarayonlarida alohida seolit kristallariga va ulardan diffuziyalanishi uchun zarur bo‘lgan ikkilamchi g‘ovakli strukturani yaratadi. Tabiiy gillar faqat seolitlarni qoliplashda bog‘lovchi sifatida ishlatiladi. Sintez jarayoni ikki bosqichni o‘z ichiga oladi: (1) yuqori dispersli seolit kukunini tayyorlash va (2) uni granulaga qilishdir [4-5]. Shuningdek, seolitlarni birikkan kristall agregatlardan tashkil topgan granulalar ko‘rinishida sintez qilish imkoniyati ham mavjud [6]. Olimlar tomonidan sintez qilingan kristalli aluminosilikatlar bog‘lovchisiz granullangan seolitlar deb ataladi. Ularning sintezi yuqori darajada disperslangan seolitlar bilan taqqoslanadigan adsorbsion qiymatga ega mikrog‘ovak alyuminosilikatlarni ishlab chiqarishga qaratiladi [7-8].

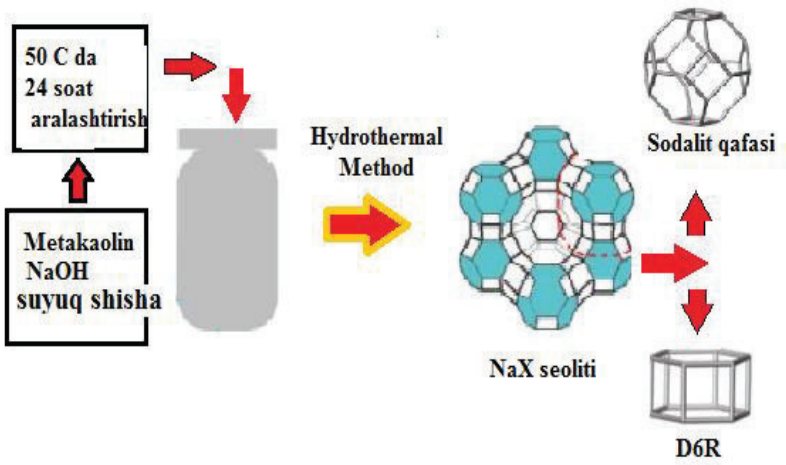
Tadqiqot ishlarida konlardan qazib olingan yuqori sifatli, kristalli kaolin yordamida seolit NaX sintezi olib borilgan [9-10]. Tadqiqotda metakaolinizatsiya harorati, reaksiya aralashmasidagi Si/Al nisbati o‘zgarishi va gidrotermik reaksiya vaqtini sintez jarayoniga optimallashtirish ta’sirini o‘rganildi. Sintez reaksiyasi vaqtida kremniyning hisoblangan miqdorini oshirish maqsadida natriy silikat kiritilgan. Tatqiqotlarda molekulyar elak tuzilmalarini aniqlashning asosiy usullaridan infraqizil (IR), rentgen nurlari diffraksiyasi (XRD) va sorbsiya o‘lchovlari qo‘llaniladi. Tanlangan namunalarda XRD tahlili reaksiya davomida fazalarni aniqlashning asosiy usuli bo‘lib xizmat qiladi, shu bilan birga qo‘shimcha usullar qattiq holatdagi NMR spektroskopiyasi, elektron mikroskopiya, kimyoviy tahlil, va ion almashish qobiliyatlarini tekshirish usullari hisoblanadi.

Materiallar va metodlar.

Mazkur tatqiqot ishida alyumino-silikat manbai sifatida tarkibida 31.2% Al_2O_3, 48.4% SiO_2, 1,34% Fe_2O_3 va 1,18% MgO mavjud bo‘lgan AKF-78 markali Angren kaolini olingan. Sintez uchun natriy gidroksid (99.% NaOH), natriy silikat (99.% Na_2SiO_3), kimyoviy ishlov berish va Fe^{2+} ionlarini tozalash uchun oksalat kislotadan foydalanildi. Tozalash va kimyoviy qo‘shimchalarni yuvish maqsadida destirlangan suv ishlatilgan.

NaX seoliti sintezi.

Kaolin namunasi maxsus tegirmonda maydalanib, zarracha o‘lchami 100 nm ga yetkazildi. Kaolinni metakaolinga aylantirish uchun namuna 650°C haroratda qizdirildi. Maydalangan namuna 100°C da 0,5 M oksalat kislotasi ($C_2H_2O_4$) eritmasi bilan ishlov berilib, xona haroratiga qadar sovitildi va so‘ngra filtrlandi. Filtrlangan namuna keyinchalik quritildi. Si/Al = 2 va Na/Si = 1:1 molyar nisbatdagi aralashmani tayyorlash uchun metakaolin, NaOH va suyuq shisha tegishli miqdorda olindi. Aralashma 100°C haroratda magnit aralashtirgich yordamida qayta ishlangan. Tayyorlangan namuna avtoklavga o‘tkazilib, 120°C da 24 soat davomida gidrotermal ishlov berildi. Namuna distillangan suv bilan yuvildi, filtrlandi va bir kecha davomida quritildi (1-rasm).

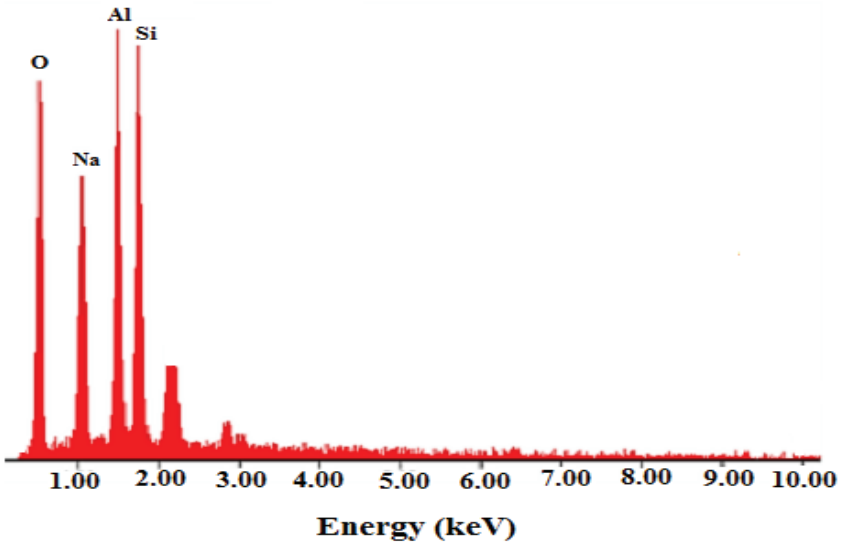


1-rasm. **Gidrotermal usulda NaX seoliti sintez sxemasi**

Natija va muhokamalar.

Kaolinning kimyoviy tarkibini aniqlashda (XRF) usulida foydalanildi. NaX seoliti va kaolin kristall fazalarni aniqlash va kristallik darajasini baholash uchun SHIMADZU XRD-6100 qurilmasida (XRD) tahlil qilingan. Ma’lumotlar 5-40 ° 2th oralig‘ida o‘rganildi. NaX seolitining infraqizil spektrlari (SiO_2/Al_2O_3 nisbati =2) Bruker ALPHA II FT-IR qurilmasi yordamida spektrlar to‘lqin sonida qayd etilgan.

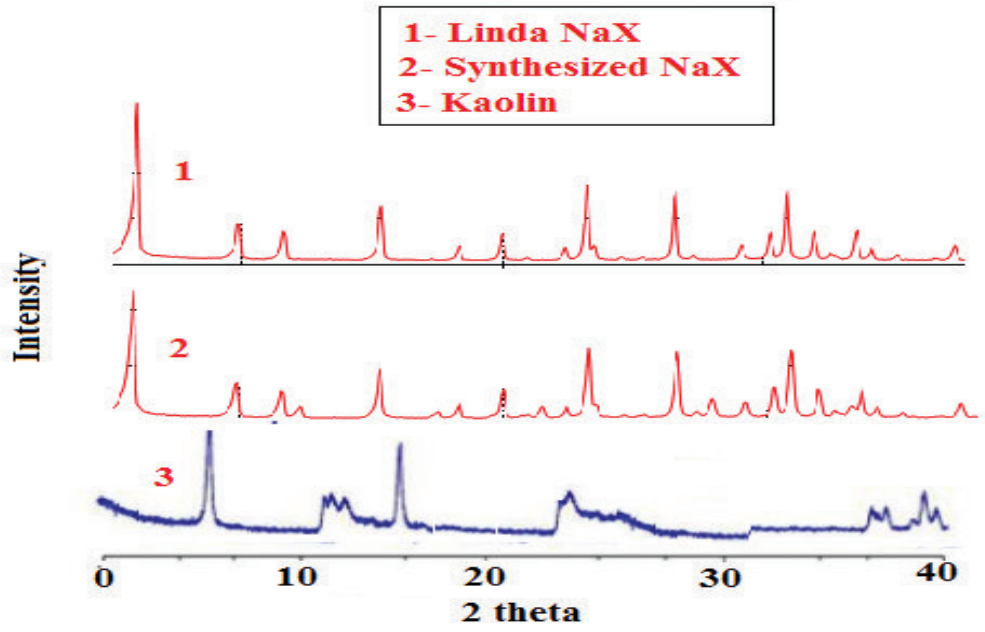
Organik kislota eritmasi bilan ishlov berilgan kaolin tarkibida SiO_2 va Al_2O_3 oksidlari bo‘ladi. Oz miqdorda metall oksidlari saqlanib qoladi. Tozalangan kaolindagi past konsentratsiyali metall oksidilari NaX seoliti sinteziga hal bermaydi. Olingan NaX seolitining kimyoviy tarkibida asosan kremniy va kisloroddan iborat bo‘lib, natriy barqarorlashtiruvchi kation vositasi sifatida ishtirok etadi (2-rasm). Sintez jarayonida kaolin NaOH eritmasida eriydi, oxirgi bosqichda destirlangan suv bilan yuviladi. So‘ngra 800 °C haroratda kalsinlanadi.



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

Seolit sintezida sintez sharoitlari, reaktivlarning tozaligi, harorat, olingan mahsulotning kristallilik holati alohida ahamiyatga ega. Kristallanish vaqti gidrotermik sintez usulida muhim hisoblanib, kristallanish vaqti va haroratini jarayonda optimallashtirish zarur. Sintez mahsulotlarining molyar nisbati NaX seolitining sirt maydoniga va tuzulishiga ta'sir qiladi.

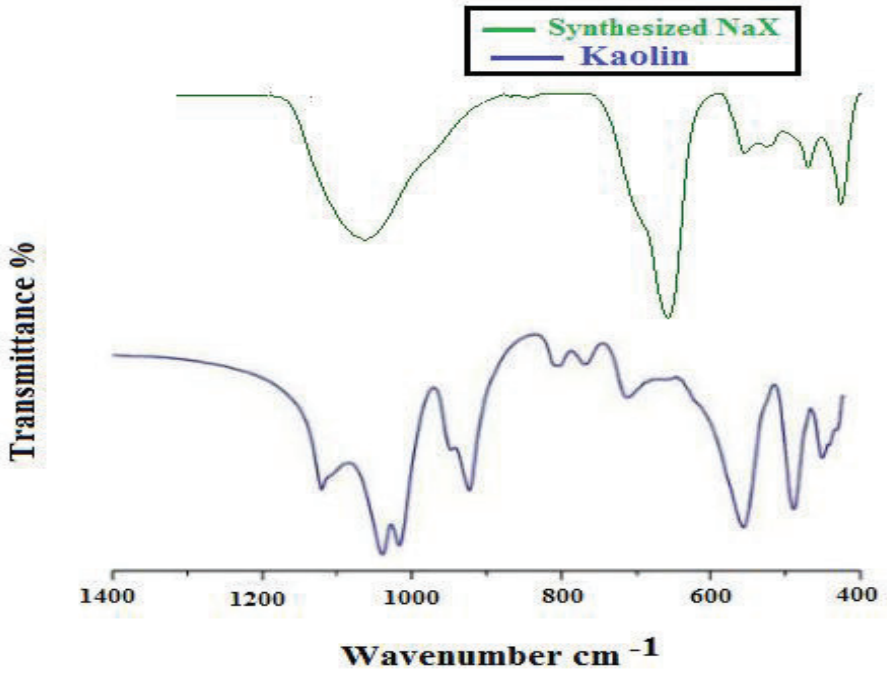
Gidrotermik sintez usulida harorat seolitning yadrolanishi va kristallanishida muhim parametrdir. Seolit sintezida yuqori harorati issiqlik energiyasini oshirib, kristallanish vaqtini qisqartiradi. Asosan yuqori haroratda seolitning shakllanishi to'g'ri amalga oshadi. Tadqiqotda qayta ishlov berilgan Agren kaolinidan seolit NaX sintezi uchun kristallanish harorati 120 °C deb belgilandi. Sintezlangan seolitning morfologik tuzilishi va kristallanishi bo'yicha bir nechta tahlillar o'tkazilgan. Angren kaolinidan foydalangan holda gidrotermal usulda sintez qilingan NaX seoliti, Linde NaA seoliti va kaolin namunasi SHIMADZU XRD-6100 difraktometri yordamida rentgen nurlari difraksiyasi (XRD) yordamida tahlil qilindi. Ushbu namunalarning XRD ma'lumotlari turli xil diffraksiya cho'qqilarini qayd etganligi bilan aniqlandi. (3-rasm)



3-rasm. **Kaolin, Linda NaX va sintez qilingan NaX seolit kristallarining XRD tasviri**

Sintezlangan NaX seoliti XRD ma'lumotlarida 6,08°, 9,94°, 23, 27°, 26, 61° va 31,98° cho'qqilarning mavjudligi, mazkur namuna standart X tipidagi seolitning cho'qqilariga mos ekanligini ko'rsatdi. Sintezlangan NaX seolitining XRD ma'lumotlari IZA tomonidan belgilangan NaX seoliti uchun standart cho'qqilarga mos keladi [19]. Tadqiqotda qayta ishlov berilgan Agren kaolini XRD ma'lumotlari o'rganilganda 12,05° va 24.74° dagi 2 ta cho'qqilar past intensivlikda ekanligi ko'rindi. Qayta ishlov berilgan Agren kaolini natriy gidroksidda to'liq erimay qolganligini ko'rsatdi.

Tadqiqotda qayta ishlov berilgan Agren kaolini va silikatdan olingan NaX seolitining infraqizil yutilishi va o'tkazuvchanligi Bruker ALPHA II FT-IR spektrometri yordamida o'lchab ko'rildi. Seolit tarkibidagi strukturaviy va funksional guruhlar holati to'g'risida tahlil o'tkazildi. Sintezlangan NaX seolitining IQ spektrlari Agren kaolini spektrlari bilan solishtirib ko'rildi (4-rasm).



4-rasm. **Sintezlangan NaX seolit va kaolinning FTIR spektrlari**

Agren kaolini 1108 sm^{-1} spektrida tetraedral SiO_4 va AlO_4 birliklarining cho'ziq tebranishlari, 1028 sm^{-1} cho'qqisida Si-O-Si ning tekislikda cho'zilgan tebranishi sabab paydo bo'lgan spektrlar mavjud. 914 sm^{-1} dagi Al-O-H tebranishi NaX seoliti spektri uchun xos emas. Simmetrik Si-O-Si tebranishi 756,43 sm^{-1} da, assimetrik Si-O-Si tebranishi past intensivlik bilan kuzatildi. Shuningdek, 988,66 sm^{-1} dagi yuqori intensivlikdagi keskin cho'qqisi Si-O-Si assimetrik tebranishiga mos keladi. Yana bir aniq tebranish 564,56 sm^{-1} da kuzatildi, bu X tipidagi seolit strukturasiga xos bo'lgan ikkilamchi qurilish birliklari bo'lgan ikkilamchi olti a'zoli halqalar (D6R) mavjudligi bilan bog'liq. Suv molekulalarining seolit kationlari yoki ramkadagi kislorod ionlari bilan bog'lanishi seolitning ochiq tuzilishiga bog'liq. 3452,22 sm^{-1} da kuzatilgan keng tebranish diapazoni ramka kislorod ionlari bilan bog'langan (OH) vodorodga mos keladi. Bundan tashqari, spektrometr ma'lumotlarida suv molekulalarining xarakteristikasi bo'lgan 1640,55 sm^{-1} da kuchli tebranish mavjud. Ushbu spektroskopik tahlillar shuni ko'rsatadiki, kremniy va alyuminiy manbai bo'lgan kaolin yordamida sintez qilingan seolit NaX kristalli strukturasi muvaffaqiyatli shakllangan.

Xulosa.

Gidrotermal usulda sintez qilingan NaX seoliti Bruker ALPHA spektrometri yordamida tahlil qilinib, uning tarkibi sintetik NaX seolitiga o'xshash ekanligini tasdiqladi. Bundan tashqari, olingan namunani boshqa olimlar tomonidan sintezlangan namunalar bilan taqqoslashda deyarli bir xil spektral xususiyatlar mavjudligi aniqlandi.

NaX Seolit namunasining FTIR tahlili aniq tebranish zonalarini ko'rsatdi, jumladan: Si–O yoki Al–O tebranishlariga mos keladigan 464,84 sm^{-1}, 756,43 sm^{-1} simmetrik Si–O–Si tebranishlari uchun, 988,66 sm^{-1} assimetrik Si–O–Si tebranishlar 566,09 sm^{-1} qo'sh olti a'zoli halqa (D6R) bilan bog'liq, X tipidagi seolit strukturasining ikkilamchi qurilish birligi bo'lgan keng (OH) vodorod cho'zuvchi tebranish uchun 3444,0 sm^{-1} tebranish zonalari aniqlandi. Bundan tashqari, 1640,55 sm^{-1}dagi intensiv chiziq suv molekulalarining xarakteristikasi sifatida aniqlandi. Ushbu tebranish chiziqlari NaX seolit namunasi yuqori aniqlikda X tipidagi seolitlarga mos keladigan

xususiyatlarni namoyon etishini ko‘rsatadi. Tatqiqotdagi gidrotermal sintez yo‘li bilan boyitilgan AKF-78 markali Angren kaolinidan sintez qilingan NaX seoliti X tipidagi seolitning tebranish xarakteristikalari va xususiyatlariga mos kelishini ko‘rsatib, uning yaroqliligi va struktura yaxlitligini tasdiqlaydi.

ADABIYOTLAR

1. Vita Nur Iftitahiyah, Didik Prasetyoko, Hadi Nur Ibnu Sina, Hasliza Bahruji, Hartati Hartati. Synthesis and characterization of zeolite NaX from Bangka Belitung Kaolin as alternative precursor. Malaysian Journal of Fundamental and Applied Sciences, 2022, 14(4): 964–974.

2. Hartati, Satya Candra Wibawa Sakti, Putri Bintang Dea Firda, Chabibah Saidah. Optimization of Pretreatment and Hydrothermal Process of Na-X Zeolite from Kaolin and Metakaolin. Jurnal Kimia Valensi, 2024, 10(2): 113–130.

3. Abdulrazak Shittu. Synthesis and Characterization of Novel Zeolite-X for Small Molecule Adsorption. Zeugma Biological Science, 2024, 5(2): 1–16.

4. Study “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.

5. Facile Synthesis of Zeolite NaX from Natural Attapulgite Clay for Pb^{2+} Adsorption. Chemistry, 2024, 6(5): 1217–1229.

6. Lamellar Zeolite-X Prepared from Kaolin: Characterization and Application. Micro & Nano Letters, 2024, Volume (Issue): 153-162 (taxminiy sahifalar).

7. Novel small grain X zeolite molecular sieve from calcined kaolin: Study on the Mechanism of Rapid Synthesis of Small Grain NaX Type Molecular Sieve with Calcined Kaolin. Scientific.Net KEM, 2023, 562-565: 1027–1035

8. Efficacy of Novel NaX/MgO–TiO_2 Zeolite Nanocomposite for the Adsorption of Methyl Orange Dye: Isotherm, Kinetic and Thermodynamic Studies. Journal of Inorganic and Organometallic Polymers and Materials, 2019, 30(8): 2067–2080.

9. Characterization and application of Zeolite NaX prepared from local kaolin: Characterization and Cracking Activity of Zeolite Prepared from Local Kaolin. Iraqi Journal of Chemical and Petroleum Engineering, 2010, 2(4): 15–28.

10. Synthesis and characterization of zeolite X obtained from kaolin for adsorption of Zn(II). Acta Geochimica, 2010, 29(1): 130–136.

11. Synthesis of Carbon-Capturing NaX Zeolite from Rice Husk Ash: Evaluation of Its Adsorption Properties. ACS Sustainable Resource Management, 2022, 4(8): 1234–1245 (taxminiy sahifalar).

12. Synthesis of Zeolite Na-X, Na-A and Na-P Zeolites and Hydroxysodalite from Metakaolinite. Clay Minerals, 2011, 46(3): 339–354.