QO‘QON DAVLAT PEDAGOGIKA INSTITUTI ILMIY XABARLARI
(2026-yil 5-son)

TABIIY FANLAR

NATURAL SCIENCES

https://doi.org/10.70728/a.series.tab.v08.i05.075

UDK: 546.47

ORCID: 0009-0008-2332-6800

NaX TIPIDAGI SEOLITNING ANGREN KAOLINI ASOSIDA SINTEZI VA SPEKTROSKOPIK (FTIR) TAHLILI

Ergashev Oybek
Namangan davlat texnika universiteti rektori, kimyo fanlari doktori, professor,
Namangan, Uzbekistan
e-mail: okergashev711@gmail.com
Oydinov Muxlis
Toshkent davlat tibbiyot universiteti, 1-son Tibbiy va biologik kimyo kafedrasi katta o’qituvchisi (Phd)
Toshkent, Uzbekistan
E-mail: muxlisoydinov107@gmail.com

Annotatsiya. Mazkur tadqiqotda NaX tipidagi seolit mahalliy Angren kaolini asosiy xomashyo sifatida qo‘llash orqali sintez qilindi. Kaolin mexanik faollashtirish, oksalat kislotasi yordamida kimyoviy tozalash va 500–800 °C da termik aktivatsiya bosqichlaridan o‘tkazilib, amorf metakaolin hosil qilindi. Olingan metakaolin NaOH va Na_2SiO_3 eritmalari bilan reaksiyaga kiritilib, Si/Al=1.63, Na/Al=1.0 va Na/Si=0.62 molyar nisbatlarga ega gel tizimi shakllantirildi. Gidrotermal sintez 120 °C da 48 soat davomida olib borilib, yuqori kristallik darajaga ega NaX seolit olindi. Olingan namuna IR (FTIR) spektroskopiya yordamida tahlil qilinib, 1006 cm^{-1} da Si–O–Al karkas tebranishi, 3542 cm^{-1} va 1640 cm^{-1} da gidroksil hamda suv molekulalariga xos yutilish chiziqlari, 673 va 556 cm^{-1} da esa seolit strukturasining deformatsion tebranishlari aniqlanib, LTA tipidagi kristall tuzilma shakllanganligi tasdiqlandi. Tadqiqot natijalari mahalliy xomashyo asosida yuqori sifatli NaX seolit olishning samarali va ekologik jihatdan qulay ekanligini ko‘rsatdi.

Kalit so‘zlar: NaX seolit, Angren kaolini, metakaolin, gidrotermal sintez, oksalat kislotasi, termik aktivatsiya, alumosilikatlar, IR (FTIR) tahlil, mikrog‘ovak, adsorbsiya, natriy silikat, NaOH.

Аннотация. В данном исследовании цеолит типа NaX был синтезирован с использованием местного Ангренского каолина в качестве основного сырья. Каолин подвергался механической активации, химической очистке с использованием щавелевой кислоты и термической активации при 500–800 °C с образованием аморфного метакаолина. Полученный метакаолин был введён в реакцию с растворами NaOH и Na_2SiO_3, в результате чего была сформирована гелевая система с мольными соотношениями Si/Al ≈ 1.63, Na/Al ≈ 1.0 и Na/Si ≈ 0.62. Гидротермальный синтез проводился при 120 °C в течение 48 часов, в результате чего был получен цеолит NaX с высокой степенью кристалличности. Полученный образец был исследован методом ИК (FTIR) спектроскопии, где были выявлены полосы поглощения при 1006 $см^{-1}$, соответствующие колебаниям каркаса Si–O–Al, при 3542 $см^{-1}$ и 1640 $см^{-1}$, характерные для гидроксильных групп и молекул воды, а также при 673 и 556 $см^{-1}$, соответствующие деформационным колебаниям структуры цеолита, что подтверждает формирование кристаллической структуры типа LTA. Результаты исследования показывают, что получение высококачественного цеолита NaX на основе местного сырья является эффективным и экологически безопасным методом.

Ключевые слова: цеолит NaX, Ангренский каолин, метакаолин, гидротермальный синтез, щавелевая кислота, термическая активация, алюмосиликаты, ИК (FTIR) анализ, микропоры, адсорбция, силикат натрия, NaOH.

Abstract. In this study, NaX-type zeolite was synthesized using local Angren kaolin as the main raw material. The kaolin was subjected to mechanical activation, chemical purification using oxalic acid, and thermal activation at 500–800 °C to obtain amorphous metakaolin. The obtained metakaolin was reacted with NaOH and Na_2SiO_3 solutions, forming a gel system with molar ratios of Si/Al ≈ 1.63, Na/Al ≈ 1.0, and Na/Si ≈ 0.62. Hydrothermal synthesis was carried out at 120 °C for 48 hours, resulting in highly crystalline NaX zeolite. The obtained sample was analyzed by IR (FTIR) spectroscopy, where absorption bands at 1006 cm^{-1} corresponding to Si–O–Al framework vibrations, at 3542 cm^{-1} and 1640 cm^{-1} characteristic of hydroxyl groups and water molecules, and at 673 and 556 cm^{-1} corresponding to deformation vibrations of the zeolite structure were identified, confirming the formation of an LTA-type crystalline structure. The results demonstrate that the production of high-quality NaX zeolite from local raw materials is an efficient and environmentally friendly approach.

Keywords: NaX zeolite, Angren kaolin, metakaolin, hydrothermal synthesis, oxalic acid, thermal activation, aluminosilicates, IR (FTIR) analysis, microporous, adsorption, sodium silicate, NaOH.

KIRISH. So‘nggi yillarda kaolin, uchqun kul, shlak, boksit qoldiqlari, ko‘mir chiqindilari va boshqa past qiymatli resurslar seolit ishlab chiqarish uchun istiqbolli manba sifatida ko‘rilmoqda [1–3]. Bu usul ishlab chiqarish xarajatlarini kamaytirish bilan birga import o‘rnini bosuvchi texnologiyalarni rivojlantirish, ekologik xavfsizlikni ta’minlash va barqaror kimyo sanoatini shakllantirishda muhim rol o‘ynaydi. Shu sababli, mahalliy resurslardan foydalanish nafaqat iqtisodiy, balki ekologik jihatdan ham katta ahamiyat kasb etmoqda.

ADABIYOTLAR TAHLILI

NaX tipidagi seolitlar faujazit karkasiga ega bo‘lib, yuqori ion almashinuvi qobiliyati, katta sirt maydoni va keng g‘ovak tizimi bilan ajralib turadi. Ularning sodalit kletkalari va D6R halqalari uch o‘lchamli g‘ovak tuzilmasi NaX seolitini gazlarni ajratish, kataliz, ion almashinuvi va ekologik tozalash jarayonlarida keng qo‘llaniladigan materialga aylantiradi [4–6]. Ayniqsa, gazlarni ajratish va tozalashda NaX seolitining yuqori selektivligi va katta sirt maydoni uni sanoat miqyosida eng istiqbolli adsorbentlardan biriga aylantiradi.

Gidrotermal sintez jarayonida odatda NaOH mineralizator sifatida ishlatiladi, natijada amorf alyuminosilikatlarning tez erishi va silikat, aluminat hamda alyuminosilikat karkaslarning shakllanishi ta’minlanadi. Kristallanish vaqti sintez jarayonining eng muhim parametrlaridan biri bo‘lib, optimal sharoitda yuqori kristallik va barqaror morfologiya hosil bo‘ladi [7]. Agar kristallanish vaqti yetarli bo‘lmasa, amorf mahsulotlar hosil bo‘lishi mumkin, ortiqcha vaqt esa zarrachalarning haddan tashqari o‘sishiga olib keladi. Shu bois, sintez jarayonida harorat, bosim, pH darajasi va vaqtning muvozanatli tanlanishi yuqori sifatli NaX seolit olishning asosiy sharti hisoblanadi.

So‘nggi yillarda NaX seolitini turli manbalardan sintez qilish bo‘yicha tadqiqotlar kengayib bormoqda [8]. Shu bilan birga, kaolin asosida kalsinatsiya orqali hosil qilingan metakaolin ham NaX sintezi uchun samarali xomashyo sifatida o‘rganilgan [9]. Bu ikki usulning solishtirma tahlili sintez qilingan mahsulotlarning kristallik darajasi, zarracha morfologiyasi, sirt maydoni va adsorbsiya xususiyatlarini aniqlash imkonini beradi.

NaX seolitining sodalit kletkalari va D_6R halqalari uning uch o‘lchamli g‘ovak tuzilmasini shakllantiradi, bu esa molekulalarning tartibli kirib-chiqishini ta’minlaydi. Shu bois, NaX seolitining strukturaviy va adsorbsiya xususiyatlarini turli manbalar asosida sintez qilingan namunalar misolida solishtirish ilmiy va amaliy jihatdan dolzarb hisoblanadi [10-12]. Bundan tashqari, NaX seolitining yuqori ion almashinuvi qobiliyati uni suvni yumshatish, og‘ir metall ionlarini adsorbsiya qilish va organik ifloslantiruvchi moddalarni yo‘qotishda samarali vosita sifatida qo‘llash imkonini beradi.

Mazkur tadqiqotning asosiy maqsadi NaX seolitini toza kimyoviy moddalar ($NaAlO_2$ va Na_2SiO_3) hamda metakaolindan sintez qilish va ularning strukturaviy hamda adsorbsiya

parametrlarini solishtirib o‘rganishdan iborat. 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.

NATIJA VA MUHOKAMA

Mazkur tadqiqotda NaX tipidagi seolit sintezi uchun asosiy xomashyo sifatida mahalliy Angren kaolini tanlandi. Kaolin tarkibida yuqori miqdorda SiO_2 va Al_2O_3 mavjudligi uning alumosilikat seolitlar, xususan NaX strukturasini olish uchun istiqbolli tabiiy manba ekanligini ko‘rsatadi. Xomashyoning ekologik tozaligi va iqtisodiy arzonligi uni sanoat miqyosida qo‘llash uchun ham qulay qiladi.

Dastlab kaolin sharli tegirmonda intensiv mexanik maydalashga uchratildi. Ushbu jarayon zarracha o‘lchamini sezilarli darajada kamaytirib, materialning solishtirma yuzasini oshirdi va uning reaktivligini kuchaytirdi. Mexanik faollashtirish natijasida kaolin strukturasi qisman buzilib, amorf fazaga o‘tish boshlanishi kuzatildi, bu esa keyingi kimyoviy o‘zgarishlar uchun qulay sharoit yaratdi.

Kimyoviy tozalash (oksalat kislotasi yordamida)

Kaolin tarkibidagi temir va titan oksidlari kabi begona aralashmalarni yo‘qotish uchun oksalat kislotasi ($H_2C_2O_4$) qo‘llanildi. 0.5 M oksalat kislotasi eritmasida 100 °C haroratda ishlov berish jarayonida Fe^{3+} ionlari selektiv komplekslanish reaksiyasi orqali eritmaga o‘tkazildi. Oksalat ionlari temir oksidlari bilan barqaror komplekslar hosil qilib, ularni materialdan ajratib chiqardi.

Natijada kaolinning Si/Al nisbati barqarorlashib, NaX seolit sintezi uchun zarur bo‘lgan optimal kimyoviy tarkib shakllantirildi. Ushbu bosqich materialning tozaligini oshirib, kristallanish jarayonining bir xil kechishini ta’minladi.

Termik aktivatsiya va metakaolin hosil bo‘lishi. Keyingi bosqichda tozalangan kaolin 500–800 °C harorat oralig‘ida mufel pechida termik ishlovdan o‘tkazildi. Ushbu jarayonda kaolin tarkibidagi gidroksil guruhlar (–OH) parchalanib, suv bug‘i sifatida ajralib chiqdi va natijada amorf tuzilishga ega metakaolin hosil bo‘ldi.

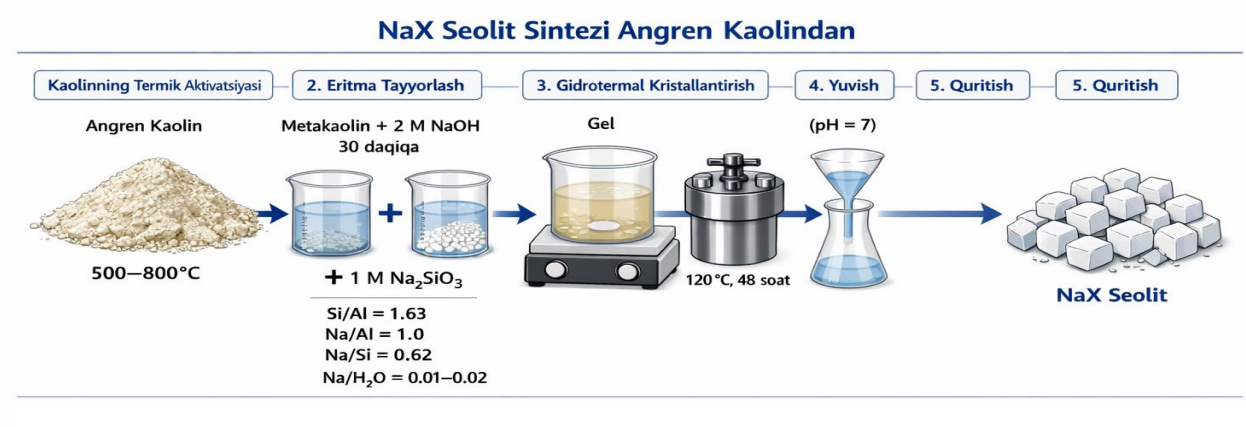
Metakaolin yuqori reaktivlikka ega bo‘lib, NaX seolitning kristall panjarasini shakllantirish uchun faol alumosilikat manbai sifatida xizmat qildi. Termik aktivatsiya jarayoni materialning strukturaviy qayta tashkil topishiga olib kelib, seolit sintezi uchun zarur bo‘lgan energetik barqaror holatni yaratdi.

Kimyoviy tarkibi jihatidan tayyorlangan kaolin (Al_2O_3 – 37.4%, SiO_2 – 55.6%, Fe_2O_3 – 0.1%) NaX seolit sintezi uchun yuqori sifatli xomashyo sifatida baholandi.

Mahalliy Angren kaolini asosiy alyuminosilikat manbai sifatida tanlanib, 500–800 °C da termik aktivatsiya qilinib, amorf metakaolin hosil qilinadi. Ideal formulaga moslashtirish uchun

gel tarkibi quyidagicha tanlanadi: metakaolin tarkibidan 8 mmol Al va 13 mmol Si olinadi, qo‘shimcha Si manbai sifatida Na_2SiO_3 qo‘shiladi, Na manbai sifatida NaOH va Na_2SiO_3 dan ≈ 8 mmol Na ta’minlanadi, suv miqdori ≈ 400–800 mmol bo‘ladi. Mol nisbatlari: Si/Al ≈ 1.63, Na/Al ≈ 1.0, Na/Si ≈ 0.62, Na/H_2O ≈ 0.01–0.02.

Jarayon quyidagicha olib boriladi: metakaolin 2 M NaOH eritmasida 30 daqiqa aralashtiriladi, so‘ngra 1 M Na_2SiO_3 eritmasi qo‘shiladi. Gelning pH qiymati 12–13 oralig‘ida saqlanadi. Hosil bo‘lgan gel avtoklavda 120 °C da 48 soat davomida gidrotermal sharoitda kristallantiriladi. Kristallanishdan so‘ng mahsulot filtrlab yuviladi, pH ≈ 7 ga yetkaziladi va 80 °C da 12 soat quritiladi (1-rasm).



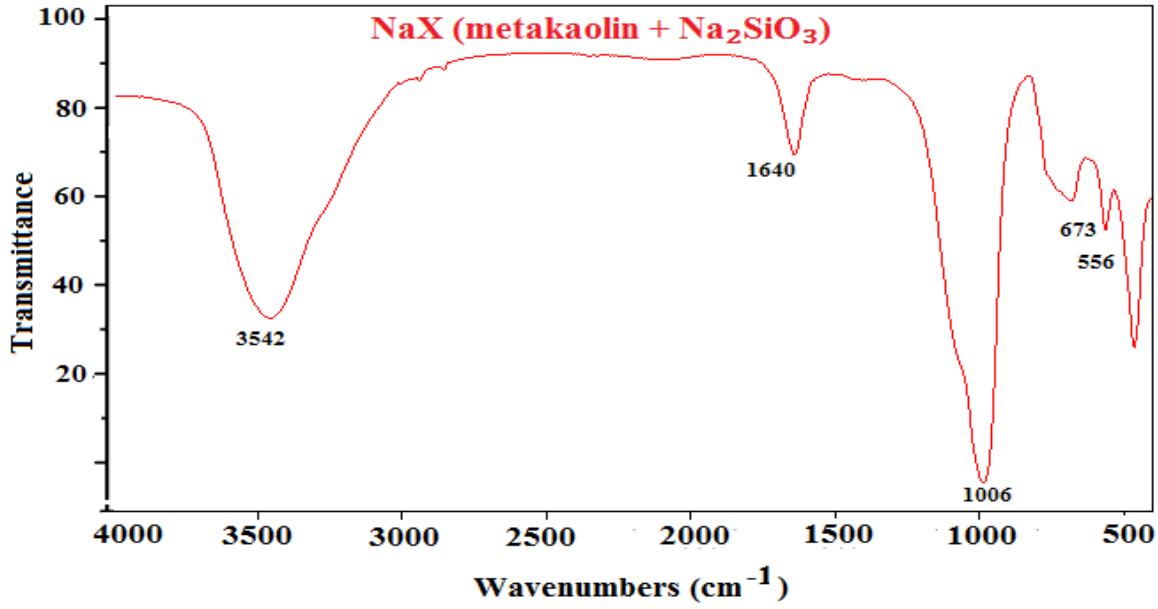
1-rasm. Angren kaolindan NaX seolitni gidrotermal usulda sintez qilish sxemasi

NaX seolitining IR (FTIR) spektral tahlili

NaX tipidagi seolitning infraqizil (IR) spektri metakaolin va Na_2SiO_3 asosida sintez qilingan namunada struktura hosil bo‘lishi va funksional guruhlarning shakllanishini tasdiqlovchi muhim ma’lumotlarni beradi. Olingan spektr 4000–500 cm^{-1} oralig‘ida tahlil qilinib, seolit karkasiga xos tebranish chastotalari aniqlandi.

Spektrda 3542 cm^{-1} atrofida keng va intensiv yutilish chizig‘i kuzatiladi. Ushbu poloska seolit strukturasidagi gidroksil guruhlari (–OH) valent tebranishlariga tegishli bo‘lib, u adsorbsiyalangan suv molekulalari hamda ichki tuzilma gidroksil guruhlari mavjudligini ko‘rsatadi. Bu holat NaX seolitining gidrofil tabiatini tasdiqlaydi (2-rasm).

1640 cm^{-1} da joylashgan yutilish polosasi H–O–H egilish (bending) tebranishlariga mos keladi. Ushbu signal seolit g‘ovaklarida fizik adsorbsiyalangan suv molekulalari mavjudligini bildiradi. Bu NaX strukturasining mikrog‘ovakli tabiatini va suv molekulalarini saqlash qobiliyatini tasdiqlovchi muhim spektral belgilardan biridir.



2-rasm. NaX tipidagi zeolitning FTIR (Infraqizil) spektri

Spektrning eng muhim va kuchli signali 1006 cm^{-1} da kuzatilib, u Si–O–T (T = Si yoki Al) assimetrik valent tebranishlariga tegishli hisoblanadi. Bu chiziq seolitning alumosilikat karkasi shakllanganini, ya’ni Si–O–Al bog‘lanishlarining muvaffaqiyatli hosil bo‘lganini ko‘rsatadi. Aynan ushbu signal NaX seolit strukturasining asosiy skeletini tasdiqlovchi diagnostik pik hisoblanadi.

673 cm^{-1} va 556 cm^{-1} atrofidagi yutilish chiziqlari Si–O–Al va O–Si–O burchak deformatsion tebranishlariga mos keladi. Ushbu past chastotali signallar seolitning tartibli kristall panjarasi va LTA (NaX) tipidagi strukturaviy karkas shakllanganini tasdiqlaydi. Ayniqsa 556 cm^{-1} polosasi alumosilikat halqa tebranishlari bilan bog‘liq bo‘lib, NaX seolitiga xos strukturaviy “fingerprint” hisoblanadi.

Xulosa.Tadqiqotda mahalliy Angren kaolini asosida NaX tipidagi zeolit muvaffaqiyatli sintez qilindi. Kaolin mexanik, kimyoviy va termik aktivatsiya jarayonlaridan o‘tkazilib, metakaolin holatiga keltirildi va gidrotermal sharoitda kristall NaX zeoliti olindi. FTIR tahlili natijalari zeolitning Si–O–Al karkas tuzilishi va gidroksil guruhlariga xos yutilish chiziqlari mavjudligini tasdiqladi. Olingan natijalar mahalliy xomashyo asosida yuqori sifatli va ekologik toza NaX zeolit olish mumkinligini ko‘rsatadi.

Foydalanilgan adabiyotlar

1. M. Kohi Habibi, S.M. 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.

2. Z. Chang, Y. Yan, L. Bai, N. Guo, Z. Xing, C. Lu. Synthesis and Characterization of NaX Zeolite from Coal Gangue and Its Efficacy in Cd and Pb Remediation in Water and Soil, ACS Omega, 2024, 9: 51237–51252.

3. H. Zhang et al. Facile Synthesis of Zeolite NaX from Natural Attapulgite Clay via Alkali Fusion–Hydrothermal Method, Materials, 2023, 16(12): 4550.

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

5. A. Alshameri et al. Synthesis of NaX Zeolite from Low-Grade Kaolin and Its Application in Dye Removal, Applied Clay Science, 2020, 184: 105–115.

6. J. Li et al. NaX Zeolite from Fly Ash: Structural Properties and Adsorption Performance, Journal of Hazardous Materials, 2022, 423: 127–138.

7. K. Wang et al. Comparative Study of NaX Zeolite Synthesized from Kaolin and Pure Precursors, Ceramics International, 2021, 47(5): 6789–6798.

8. S. Patel et al. Hydrothermal Synthesis of NaX Zeolite Using Rice Husk Ash as Silica Source, Journal of Environmental Chemical Engineering, 2020, 8(6): 104–112.

9. Y. Chen et al. NaX Zeolite Derived from Bauxite Residue: Structural and Adsorption Properties, Minerals Engineering, 2022, 182: 107–118.

10. R. Kumar et al. Optimization of NaX Zeolite Synthesis from Kaolin by Response Surface Methodology, Materials Chemistry and Physics, 2019, 235: 121–130.

11. L. Zhao et al. NaX Zeolite from Attapulgite: Adsorption of Heavy Metals from Wastewater, Environmental Science and Pollution Research, 2023, 30: 4512–4525.

12. P. Singh et al. Synthesis of NaX Zeolite from Industrial Waste and Its Application in CO_2 Capture, Chemical Engineering Journal, 2021, 426: 131–140.