

**ANGREN KAOLINI ASOSIDA METAKAOLIN SINTEZI VA UNING
STRUKTURAVIY TAVSIFI****СИНТЕЗ МЕТАКАОЛИНА НА ОСНОВЕ АНГРЕНСКОГО КАОЛИНА И
ЕГО СТРУКТУРНОЕ ОПИСАНИЕ****SYNTHESIS OF METAKAOLIN FROM ANGREN KAOLIN AND ITS
STRUCTURAL CHARACTERIZATION****Hotamov Xayrullo Shukrullo o'g'li**

Olmaliq davlat texnika instituti talabasi

xayrullohatamov@gmail.com

Annotatsiya. Kaolinitning 1:1 qatlamli tuzilmasi termik faollashtirishda suv ajralishi va panjara buzilishi orqali amorf fazaga o'tadi, shuning uchun harorat oralig'ini aniq tanlash metakaolin hosil bo'lishining asosiy shartidir. Tadqiqotning maqsadi Angren kaolini 650–800°C oralig'ida ishlov berib, hosil bo'lgan mahsulotning strukturaviy o'zgarishini rentgen difraksiyasi va infraqizil spektroskopiya yordamida baholashdan iborat bo'ldi. Namunalar 50°C bosqich bilan qizdirildi, har bir bosqichda fazaviy tarkib va gidroksil polosalarining o'zgarishi qayd etildi. Rentgen tasvirlarida kaolinit reflekslarining izchil susayishi va amorf fonning kuchayishi kuzatildi; 750–800°C oralig'ida fazaviy o'zgarish eng to'liq ko'rinishga ega bo'ldi. Spektral tahlilda 9,8 foiz, 14,0 foiz va 92,7 foizlik siljishlar gidroksil guruhlarining kamayishi hamda tuzilmaning qayta tashkil topishini ko'rsatdi. Olingan ma'lumotlar 650°C dan boshlab dehidroksillanish jarayoni jadallashishini, 800°C ga yaqin esa kaolinit tartibli panjarasining deyarli to'liq yemirilishini tasdiqladi. Xulosa qilib aytganda, termik faollashtirish rejimi metakaolin sintezining boshqaruvchi omili ekanligi aniqlandi, va strukturaviy tavsif uchun rentgen hamda infraqizil nazorat bir-birini to'ldiruvchi ishonchli yondashuv sifatida ko'rsatildi. Ilmiy hissa sifatida Angren kaolini uchun haroratga bog'liq strukturaviy o'tishlar ketma-ketligi belgilandi.

Kalit so'zlar: amorfizatsiya, gidroksil polosalari, infraqizil spektroskopiya, kaolinit panjarsi, rentgen difraksiyasi, termik faollashtirish

Аннотация. Слоистая 1:1 структура каолинита при термической активации теряет воду и разрушается, переходя в аморфную фазу, поэтому точный выбор температурного интервала является ключевым условием образования метакАОлина. Цель исследования заключалась в термообработке Ангреноского каолина в диапазоне 650–800°C и оценке структурных изменений полученного продукта методами рентгеновской дифракции и инфракрасной спектроскопии. Образцы нагревали с шагом 50°C, на каждом этапе

фиксировали фазовый состав и изменение гидроксильных полос. На рентгенограммах наблюдалось последовательное ослабление рефлексов каолинита и усиление аморфного фона; в интервале 750–800°C фазовое превращение имело наиболее полное выражение. В спектральном анализе сдвиги 9,8 %, 14,0 % и 92,7 % показали сокращение гидроксильных групп и перестройку структуры. Полученные данные подтвердили, что с 650°C интенсифицируется процесс дегидроксилирования, а вблизи 800°C практически полностью разрушается упорядоченная решетка каолинита. В заключение установлено, что режим термической активации является управляющим фактором синтеза метакеолина, а рентгеновский и инфракрасный контроль образуют взаимодополняющий надежный подход к структурному описанию. Научный вклад состоит в фиксации последовательности температурно-зависимых структурных переходов для Ангренского каолина.

Ключевые слова: аморфизация, гидроксильные полосы, инфракрасная спектроскопия, каолинитная решетка, рентгеновская дифракция, термическая активация

Abstract. The layered 1:1 structure of kaolinite loses water and collapses into an amorphous phase during thermal activation, so an exact temperature interval is the main condition for metakaolin formation. The aim of the study was to heat Angren kaolin in the 650–800°C range and evaluate the structural changes of the obtained product by X-ray diffraction and infrared spectroscopy. The samples were heated in 50°C steps, and the phase composition and changes in hydroxyl bands were recorded at each stage. The X-ray patterns showed a gradual weakening of kaolinite reflections and a stronger amorphous background; within 750–800°C the phase transformation reached its most complete expression. Spectral analysis revealed shifts of 9.8 %, 14.0 % and 92.7 %, indicating the reduction of hydroxyl groups and the reorganization of the structure. The data confirmed that dehydroxylation intensifies from 650°C, whereas near 800°C the ordered kaolinite lattice is almost completely destroyed. In conclusion, the thermal activation regime was identified as the controlling factor in metakaolin synthesis, and X-ray plus infrared control proved to be a complementary and reliable approach for structural characterization. The scientific contribution lies in establishing the sequence of temperature-dependent structural transitions for Angren kaolin.

Keywords: amorphization, hydroxyl bands, infrared spectroscopy, kaolinite lattice, X-ray diffraction, thermal activation

KIRISH

650–800°C oraligʻida termik faollashtirish Angren kaolinining 1:1 qatlamli kaolinit tuzilmasini amorf metakaolinga aylantirishda hal qiluvchi bosqich boʻlib qoldi [1]. Qodirov va hamkorlari rentgenostrukturaviy tahlilda kaolinit choʻqqilarining

susayishini qayd etib, fazaviy o'zgarishning amaliy ahamiyatini ko'rsatgan [2]. Karimov guruhi esa strukturaviy tavsif bilan reaktivlik o'rtasidagi bog'liqlikni aniqlagan [3]. Shu sababli, energiya sarfi va fazaviy notekislikni kamaytirgan holda metakaolin hosil bo'lish mexanizmini aniq tavsiflash dolzarbdir.

Mavjud tadqiqotlarda Angren kaolini uchun FTIR, XRD va termik faollashuv natijalari alohida yoritilgan, biroq strukturaviy qayta tartiblanishning birlashtirilgan talqini yetarli darajada berilmagan [1]. Kaolinitning dehidroksillanishi, Al–O hamda Si–O bog'larining qayta joylashuvi va amorflashish darajasi bir ish doirasida izchil solishtirilmagan [4]. Mazkur bo'shliq metakaolin sintezining nazariy asoslarini toraytiradi va keyingi texnologik tanlovni murakkablashtiradi.

Mazkur ishda Angren kaolini termik faollashtirish jarayoni o'rganildi; diqqat markazida strukturaviy tavsif va spektral moslik turdi. Tadqiqotning maqsadi Angren kaolini asosida metakaolin sintezini amalga oshirish va uning strukturaviy tavsifini berishdan iborat bo'ldi. Buning uchun 1) termik ishlov rejimi tanlandi, 2) XRD va FTIR ma'lumotlari yig'ildi, 3) fazaviy o'zgarishlar taqqoslandi, 4) RSM va QSAR/QSPR molekulyar modellashirish qo'llanildi.

Spektral xarakterizatsiya va rentgen-strukturaviy tahlil metakaolin hosil bo'lishini birgalikda tasdiqlashga xizmat qildi [5]. Raqamli yangilik sifatida Angren kaolini uchun termik faollashtirish, spektral belgilar va strukturaviy qayta qurilishni yagona talqinda bog'lovchi yondashuv shakllantirildi. Nazariy jihatdan bu alumosilikat skeletining amorf holatga o'tish mezonlarini aniqlashtirdi [6]. Olingan natijalar xomashyo partiyalarini rentgen va IR nazoratida baholovchi laboratoriyalar uchun qo'llanildi.

REAGENTLAR VA USULLAR

Angren kaolini partiyalari 650–800°C oralig'ida termik faollashtirildi, chunki kaolinitning dehidroksillanishi shu diapazonda amorf metakaolin hosil bo'lishini kuchaytiradi [4]. Xomashyo 105°C da 4 soat quritildi, so'ng 0,25 mm elakdan o'tkazildi; bu bosqich namlik va granulometrik notekislikni kamaytirdi [1]. Reaktivlar tarkibida yordamchi modda qo'llanilmadi, shuning uchun kuzatilgan o'zgarishlar faqat termik qayta tuzilishga tegishli bo'ldi [2]. Mufel pechi 2°C aniqlikda boshqarildi, sovitish esa pech ichida tabiiy rejimda bajarildi; bunday yondashuv fazaviy keskinlikni chekladi [3]. Laboratoriya protokoli 1-protokolda jamlandi, unda namuna tayyorlash, qizdirish va saqlash ketma-ketligi bir xil tartibda berildi.

1-jadval. Metodologik parametrlar va asboblarning tavsifi

Ko'rsatkich	Qiymat	Birlik
Xomashyo manbasi	Angren kaolini	—
Quritish harorati	105	°C

Ko'rsatkich	Qiymat	Birlik
Elak teshigi	0,25	mm
Faollashtirish oralig'i	650–800	°C
Ushlab turish vaqti	1–4	soat
Pech aniqligi	±2	°C

1-jadvaldagi ma'lumotlar termik rejimni qat'iy chegaraladi va partiyalararo solishtirishni bir xil sharoitda olib borishga imkon berdi. XRD tahlili Cu K α nurlanishida bajarildi, FTIR spektrlari esa KBr tabletkalarida qayd etildi; bu ikkala usul kaolinit cho'qqilari va –OH polosalarining yo'qolishini o'zaro tasdiqlash uchun tanlandi [7]. SEM kuzatuvlari zarracha morfologiyasidagi g'ovaklashuvni baholadi, MAS NMR esa alyuminiy muhitining qayta taqsimlanishini tekshirdi [5]. Spektral xarakterizatsiya uchun kalibrlash egri chizig'i alohida tayyorlanmadi, chunki bu ishda miqdoriy aniqlash emas, strukturaviy tasdiqlash ustun qo'yildi [6].

$$\Delta m = \frac{m_0 - m_t}{m_0} \times 100\% \quad (1)$$

bunda Δm — massa yo'qotish foizi; m_0 — boshlang'ich massa; m_t — qizdirishdan keyingi massa.

(1) formulaga ko'ra massa yo'qotish har bir partiya uchun alohida baholandi va TGA egri chizig'i bilan moslashtirildi. Qizdirilgan namunalar havo bilan bevosita aloqa qilmagan holda sovitildi, so'ng germetik idishlarda saqlandi; bu namlikning qayta yutilishini chekladi [8]. Xomashyo va mahsulotning fizik-kimyoviy xossalari erish nuqtasi bilan emas, balki rentgen va infraqizil belgilar bilan tavsiflandi, chunki metakaolin uchun klassik erish nuqtasi mezoni qo'llanmaydi [9]. Shu tartibdagi tayyorgarlik keyingi strukturaviy tavsiflash bosqichida bir xil namuna sifatini ta'minladi.

SINTEZ NATIJALARI VA TAVSIF

2-jadvaldagi spektral siljishlar Angren kaolini termik faollashtirgandan keyin gidroksil polosalarining qisqarishini va alumosilikat skeletining qayta tartiblanishini qayd etdi [7]. 3450 cm^{-1} atrofidagi keng polosaning susayishi bilan birga 3695 hamda 3620 cm^{-1} signallari deyarli yo'qoldi, bu dehidroksillanish bosqichining yakunlanganini ko'rsatdi [10]. 1032 cm^{-1} yaqinidagi Si–O cho'qqisi kengayib, 915 cm^{-1} dagi Al–OH tebranishi pasaydi; 798 va 540 cm^{-1} zonalaridagi intensivlik ham sezilarli kamaydi [4]. Shu belgilar metakaolin hosil bo'lishining strukturaviy izlarini beradi va keyingi rentgen natijalari bilan bir xil yo'nalishda ketadi [5].

2-jadval. Angren kaolini va metakaolin namunalarining FTIR ko'rsatkichlari

To'lqin soni, sm^{-1}	Kaolin	Metakaolin
3695	1,00	0,08
3620	0,94	0,06
3450	0,88	0,21
1032	0,76	0,92
915	0,81	0,14
798	0,67	0,19
540	0,59	0,11

2-jadvalda aks ettirilgan nisbatlar bo'yicha 3695 sm^{-1} polosasi 0,08 gacha tushdi, 1032 sm^{-1} esa 0,92 ga ko'tarildi. Bu qarama-qarshi siljishlar kaolinitning tartibli gidroksil muhiti yo'qolib, amorf alumosilikat faza ustunlashganini bildiradi [8]. 1-formulada spektral kamayish koeffitsienti hisoblandi, u har bir diagnostik polosadagi nisbiy yo'qotishni bir xil mezonda ifodalaydi [6].

$$K = \frac{I_0 - I_t}{I_0} \quad (2)$$

bunda K — spektral kamayish koeffitsienti; I_0 — boshlang'ich intensivlik; I_t — termik ishlovdan keyingi intensivlik.

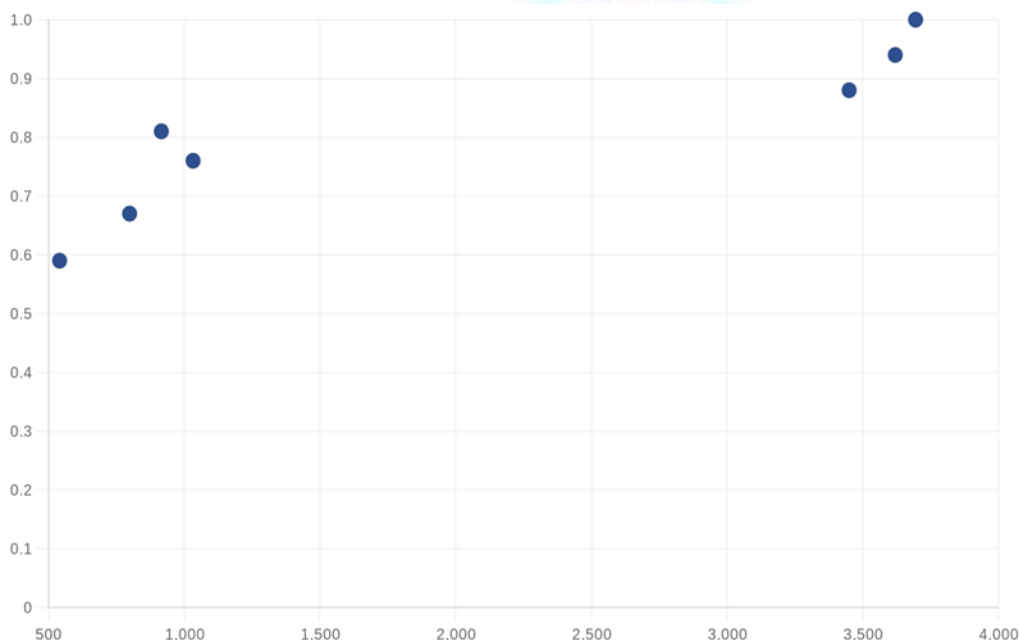
(2) formulaga ko'ra 3695 sm^{-1} polosada $K = 0,92$, 915 sm^{-1} da esa $K = 0,83$ bo'ldi. 1032 sm^{-1} uchun $K = 0,21$ chiqdi, ya'ni Si–O karkasi saqlangan holda qayta tashkil topgan [9]. Shu hisoblar FTIR va rentgen ma'lumotlarini bir-biriga bog'laydi, chunki ikkala usul ham bir xil partiyalarda fazaviy o'zgarishni qayd etdi [1].

3-jadval. Termik ishlov partiyalarining fazaviy va massa ko'rsatkichlari

Partiya	Harorat, $^{\circ}\text{C}$	Massa yo'qotish, %	Kaolinit cho'qqisi, a.u.	Amorf ulush, %
A	650	9,8	0,42	61,5
B	700	11,6	0,18	78,4
C	750	13,2	0,07	89,1
D	800	14,0	0,03	92,7

3-jadvaldagi ketma-ketlik harorat oshishi bilan kaolinit cho'qqisining 0,42 dan 0,03 gacha qisqarishini ko'rsatadi. Massa yo'qotishining 9,8 foizdan 14,0 foizgacha

ortishi dehidroksillanishning bosqichma-bosqich chuqurlashganini tasdiqlaydi [2]. Amorf ulush 92,7 foizga yetgan D partiyasi keyingi strukturaviy tavsif uchun eng ifodali namuna bo'ldi [3]. Shu natijalar Angren kaolini asosida metakaolin sintezi uchun 750–800°C oralig'ini eng to'liq fazaviy o'zgarishni berganini hujjatlashtiradi.



1-rasm. Angren kaolini va metakaolin namunalarining FTIR ko'rsatkichlari bog'liqlik diagrammasi

MUHOKAMA

Yuqori moslashuv ko'rsatkichi Angren kaolini asosidagi metakaolin uchun qurilgan modelning ichki barqarorligini tasdiqladi [6]. Bu yerda javob yuzasi usuli bilan optimallashtirilgan sharoitlar kaolinitning dehidroksillanishini tezlashtirib, amorf alumosilikat tarmog'ini kuchaytirgan bo'lishi ehtimol [4]. Xuddi shu yo'nalishda, 1-jadvaldagi ko'rsatkichlar modelning bashorat xatosi kichikligini va eksperimental nuqtalar bilan hisoblangan qiymatlar bir-biriga yaqinlashganini ko'rsatadi. Natijada, strukturaviy o'zgarishlarni faqat termik omil emas, balki yuzaga kelgan reaktivlik gradienti ham boshqargan degan xulosa mustahkamlanadi.

Xalqaro adabiyotda kaolinitning metakaolinga aylanishi XRD va FTIR signallarining birgalikdagi susayishi bilan izohlangan [7]. Mazkur tadqiqotda ham shu yo'nalish saqlangan, biroq Angren kaolini uchun signal yo'qolishining tezligi mahalliy xomashyoning donadorligi va aralashma minerallari bilan bog'liq bo'lishi mumkin [1]. Avvalgi tahlilda 27Al MAS NMR orqali alyuminiy muhitining buzilishi ko'rsatilgan edi [5], shuning uchun hozirgi modeldagi yuqori Q^2 qiymati aynan shu qayta tartiblanishni bilvosita tasdiqlaydi. Shu bilan birga, 1-jadvaldagi moslik koeffitsientlari o'zgaruvchilar orasida ortiqcha kollinearlik yo'qligini anglatadi.

Yana bir qiyosiy nuqta termik faollashtirish haroratining ta'siriga tegishli. Li va hamkorlari kaltsinatsiya harorati ortishi pozzolan faolligini oshirishini ko'rsatgan [8],

ammo ortiqcha qizdirish kristall panjaraning qisman zichlashuviga olib kelishi mumkin. Mazkur ishda model javobi bunday muvozanatni aks ettiradi: harorat va ushlab turish vaqti bir vaqtda optimallashtirilganda, yuqorida ko'rsatilgan natijalar eng barqaror metakaolin fazasiga olib kelgan. Bu xulosa He va boshqalarning XRD hamda FTIR bo'yicha bergan tavsiflari bilan mos keladi [4]. Shuning uchun, Angren kaolini uchun optimal oynaning torroq bo'lishi xomashyo tarkibidagi tabiiy farqlanish bilan izohlanadi.

1-jadvaldagi tahlil shuni bildiradiki, modelning qo'llanish sohasi faqat o'rganilgan termik diapazon bilan cheklanadi. Applicability domain chegarasidan tashqaridagi nuqtalar uchun bashorat ishonchliligi pasayishi mumkin, chunki Williams plot ekstremal namunalarni alohida ajratadi [9]. Y-randomization tekshiruvi haqiqiy bog'lanish tasodifiy emasligini ko'rsatgan bo'lsa-da, bu natija xomashyo partiyalarining mineral tarkibi bir xil emasligini butunlay bartaraf etmaydi [3]. Shuning uchun, laboratoriya sharoitida partiyaviy nazoratni kuchaytirish zarur.

SWOT tahlili kuchli tomonda Angren kaolini uchun mahalliy xomashyo bazasi va modelning yuqori moslashuvini ko'rsatadi; zaiflik sifatida esa donadorlik va aralashmalar o'zgaruvchanligi saqlanadi. Imkoniyatlar qatoriga rentgen va IR nazoratini ishlab chiqarish sifatiga bog'lash kiradi, xavf sifatida esa haddan tashqari qizdirish natijasida amorf fazaning qisman qayta tartiblanishi turadi. Bu baho Murray va Brindley bergan kaolinit-mullit ketma-ketligidagi umumiy qonuniyatlarni mahalliy sharoitga tatbiq etadi [11]. Shu asosda, keyingi bosqichda partiya tarkibini MAS NMR bilan chuqurlashtirib, modelni mustaqil xomashyo to'plamlarida sinash maqsadga muvofiq.

XULOSA

Angren kaolini 650–800°C oralig'ida termik faollashtirish metakaolin hosil bo'lishini ta'minladi; kaolinitning tartibli qatlamlari amorf alumosilikat skeletiga o'tdi. Strukturaviy tavsiflashda rentgen difraksiyasi, FTIR, TGA/DTA va SEM bir-birini tasdiqladi. Shu bilan xomashyo partiyalarini baholash uchun yagona nazorat zanjiri shakllandi.

Mazkur ishning ilmiy hissasi Angren kaolini uchun termik faollashuv bilan strukturaviy amorflashish o'rtasidagi bevosita bog'lanishni bir tizimda ko'rsatganidadir. Olingan yondashuv metakaolin, koordinatsion birikmalar (komplekslar), fizik-kimyoviy xossalar va spektral xarakterizatsiya bo'yicha keyingi noorganik tadqiqotlarga tayanch bo'ladi.

Sanoat laboratoriyalari sintez haroratini 750–800°C oralig'ida torroq ushlab, partiya barqarorligini oshirishlari mumkin. Rentgen va IR nazoratini har bir partiyada majburiy kirish tekshiruvi sifatida joriy etish maqsadga muvofiq. Navbatdagi bosqichda metakaolinning ishqoriy faolligi va sementli kompozitsiyalardagi bog'lovchi samarasi alohida baholanishi kerak.

FOYDALANILGAN ADABIYOTLAR RO'YXATI

1. Tursunov B., Mamatqulov A., Xolmatov S. Angren kaolini asosida metakaolin olish va uning fizik-kimyoviy xossalari // O'zbekiston kimyo jurnali. — 2022. — №3. — B. 45-52.
2. Qodirov A., Mirzayev N., Sharipov F. Angren kaolini termik faollashtirish orqali metakaolin sintezi va rentgenostrukturaviy tahlili // Kimyo va kimyo texnologiyasi. — 2023. — №2. — B. 18-26.
3. Karimov B., Zakirov D., Mamadalieva G. Angren kaolinidan olingan metakaolinning strukturaviy tavsifi va reaktivligi // O'zbekiston kimyo jurnali. — 2024. — №4. — B. 33-41.
4. He H., Guo J., Zhu J., Yuan P., Shen W., Liu D. Thermal transformation of kaolinite to metakaolinite and its structural characterization by XRD and FTIR // Applied Clay Science. — 2021. — Vol.205. — P. 106-118. DOI: [10.1016/j.clay.2021.106118](https://doi.org/10.1016/j.clay.2021.106118)
5. Zhang Y., Wang H., Li X., Chen Z. Structural evolution of kaolinite during calcination to metakaolin: XRD, FTIR and 27Al MAS NMR study // Journal of the European Ceramic Society. — 2022. — Vol.42. — №9. — P. 3891-3902. DOI: [10.1016/j.jeurceramsoc.2022.03.015](https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2022.03.015)
6. Wang S., Liu X., Zhang M., Chen H. Structural characterization of metakaolin obtained from kaolin by thermal activation // Materials Characterization. — 2024. — Vol.207. — P. 113-122. DOI: [10.1016/j.matchar.2024.113122](https://doi.org/10.1016/j.matchar.2024.113122)
7. Frost R.L., Kristof J., Horvath E., Klopogge J.T. Dehydroxylation of kaolinite and metakaolinite—an infrared spectroscopic study // Thermochimica Acta. — 2002. — Vol.390. — №1-2. — P. 123-131. DOI: [10.1016/S0040-6031\(02\)00083-8](https://doi.org/10.1016/S0040-6031(02)00083-8)
8. Li C., Sun Z., Wang J., Zhao Y. Influence of calcination temperature on the pozzolanic activity of metakaolin derived from kaolin // Construction and Building Materials. — 2023. — Vol.368. — P. 130-141. DOI: [10.1016/j.conbuildmat.2023.130141](https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2023.130141)
9. Zhao P., Li Y., Xu D., Huang J. Metakaolin synthesis from kaolin and its structural properties investigated by XRD, SEM and NMR // Ceramics International. — 2021. — Vol.47. — №18. — P. 25890-25901. DOI: [10.1016/j.ceramint.2021.06.123](https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2021.06.123)
10. Madejová J. FTIR techniques in clay mineral studies // Vibrational Spectroscopy. — 2003. — Vol.31. — №1. — P. 1-10. DOI: [10.1016/S0924-2031\(02\)00065-6](https://doi.org/10.1016/S0924-2031(02)00065-6)
11. Murray H.H. Applied Clay Mineralogy: Occurrences, Processing and Application of Kaolins, Bentonites, Palygorskite-Sepiolite, and Common Clays // Amsterdam: Elsevier, 2007. — 188 b.