

## СИНТЕЗ ЦЕОЛИТА ЛЕВИНИТА И ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ РАЗЛИЧНЫХ ФАКТОРОВ НА ПРОЦЕСС КРИСТАЛЛИЗАЦИИ В ПРИРОДНОЙ СИСТЕМЕ ГАЛЛУАЗИТ–ДОЛОМИТ–ОБСИДИАН

А.Д. Аббасов<sup>1</sup>

Г.А. Мамедова<sup>2</sup>

Ф.С. Мамедова<sup>2</sup>

elieddinabbasov@ndu.edu.az

gunelmamadova@mail.ru

fizze.mammadova@mail.ru

<sup>1</sup> НГУ, Нахичевань, Азербайджанская Республика

<sup>2</sup> МНО АР ИПР, Нахичевань, Азербайджанская Республика

### Аннотация

Рассмотрен синтез фазово-чистого цеолита левинитового типа со 100%-ной степенью кристалличности на основе минеральных ресурсов Нахичеванской Автономной Республики. Изучено влияние температуры, концентрации щелочного активатора, продолжительности гидротермальной обработки на скорость кристаллизации и селективность формирования цеолита левинитового типа. Гидротермальная обработка выполнена в диапазоне значений температуры 100...300 °С в растворе NaOH с концентрацией 10...35 % в течение 50...150 ч. Установлены оптимальные параметры кристаллизации, обеспечивающие 100%-ную степень кристалличности и фазовую чистоту левинита: температура 200 °С, концентрация NaOH 20...30 %, длительность обработки 100 ч. Исходные компоненты и продукты комплексно исследованы методами рентгенофазового, ИК спектрального, дериватографического и элементного анализа, а также с использованием сканирующей электронной микроскопии. Полученные данные показали, что отклонение от оптимальных параметров синтеза приводит к снижению селективности процесса и формированию побочных фаз. Проведенные исследования соответствуют современным тенденциям развития «зеленых» технологий и рационального природопользования, создают научную базу для дальнейших исследований и усовершенствования синтеза цеолитов, способствуют открытию новых методов создания недорогих и эффективных катализаторов и адсорбентов.

### Ключевые слова

*Гидротермальный синтез, минерал, рентгенофазовый анализ, цеолит, структурообразующий агент, левинит (левин), щелочной раствор*

Поступила 08.09.2025

Принята 03.06.2026

© Автор(ы), 2026

**Введение.** Несмотря на то, что существует более 200 видов цеолитов и создаются все новые каркасные структуры, синтез некоторых из них проблематичен, так как зависит от сложных реакций, длительной кристаллизации и использования дорогостоящих реагентов.

Левинит (левин) — цеолит с двумерной системой каналов, ограниченный восьмичленными кольцами 8mR. В его каркасе одиночные шестичленные кольца (S6R) тетраэдров располагаются вдоль оси *c*, образуя полости, соединение таких колец дает двойные шестичленные кольца D6R [1, 2]. Два параллельных 8mR-канала взаимосвязаны, внекаркасные катионы распределены вдоль направлений, связанных с осью симметрии третьего порядка тригональной сингонии [3].

Синтез левинита осуществляли с использованием различных затравок, спирта, аминов или цеолита фожазитового типа, однако перечисленные методы характеризуются длительным временем кристаллизации, высоким числом химических реагентов и низкой кристалличностью получаемого продукта [4–10].

Левинит обладает высокой практической значимостью, эффективен как адсорбент CO<sub>2</sub> [11] и C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> [12], а также активен и селективен в реакциях превращения метанола в олефины [13] и при синтезе метиламинов [14, 15].

Разработка научных основ синтеза левинита на природной основе является перспективным направлением в области получения функциональных материалов. Исследование кристаллизации цеолитов снижает затраты на исходные реагенты, уменьшает число технологических этапов, способствует комплексной переработке минеральных ресурсов.

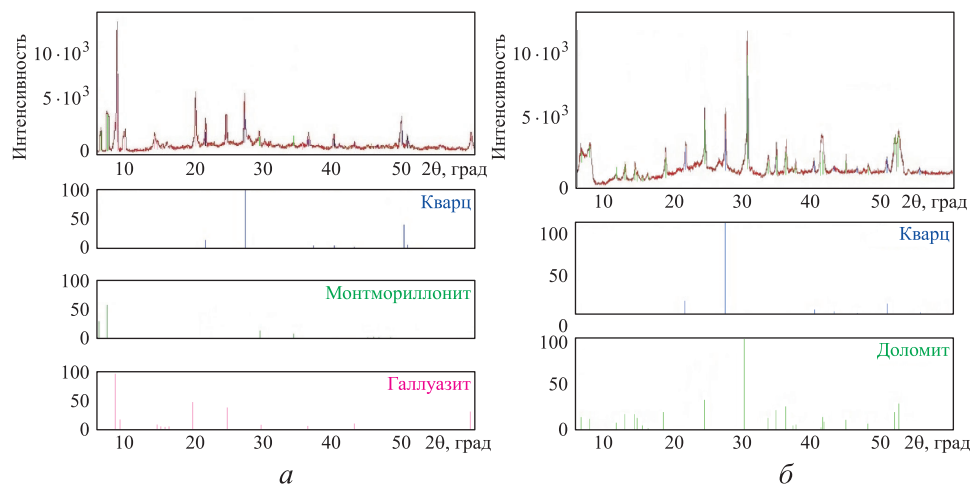
*Цель работы* — представить результаты изучения технологии синтеза фазовочистого левинита со 100%-ной степенью кристалличности на природной основе в присутствии гидроксида тетраметиламмония (ТМАОН) с учетом влияния температуры, концентрации щелочного раствора, продолжительности обработки на скорость и селективность синтеза, а также определения оптимальных параметров кристаллизации.

**Материалы и методы.** В качестве природных минералов использованы галлуазит из Пыжьельского месторождения (Республика Коми), доломит из Неграмского месторождения (Нахичеванская Автономная Республика), которые отличаются фазовой чистотой, и обсидиан из месторождения Гапыджык (Ордубадский район, Нахичеванская Автономная Республика). Химические составы природных компонентов приведены в таблице.

**Химические составы образцов обсидиана (О), галлуазита (Г) и доломита (Д)**

| Элемент | Массовый, % |       |       | Атомный, % |       |       | Количество оксидов, % |       |       | Формула                        |
|---------|-------------|-------|-------|------------|-------|-------|-----------------------|-------|-------|--------------------------------|
|         | О           | Г     | Д     | О          | Г     | Д     | О                     | Г     | Д     |                                |
| Si      | 41,58       | 29,37 | 3,93  | 30,75      | 20,48 | 2,88  | 74,97                 | 44,52 | 7,43  | SiO <sub>2</sub>               |
| Al      | 10,52       | 20,54 | –     | 5,43       | 12,89 | –     | 12,85                 | 32,78 | –     | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> |
| Ca      | 0,63        | 1,17  | 26,38 | 0,43       | 1,08  | 20,78 | 0,77                  | 2,33  | 31,34 | CaO                            |
| Na      | 2,17        | 0,63  | 0,77  | 1,63       | 0,52  | 0,42  | 3,48                  | 0,78  | 0,93  | Na <sub>2</sub> O              |
| K       | 3,01        | 0,79  | 0,65  | 2,08       | 0,59  | 0,54  | 4,96                  | 0,93  | 0,82  | K <sub>2</sub> O               |
| Mg      | 0,49        | 2,23  | 17,43 | 0,31       | 1,75  | 13,25 | 0,65                  | 3,15  | 23,44 | MgO                            |
| Fe(III) | 0,61        | 0,98  | –     | 0,49       | 0,47  | –     | 0,79                  | 1,47  | –     | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> |
| Fe(II)  | 0,32        | 0,73  | 0,98  | 0,17       | 0,34  | 0,73  | 0,42                  | 0,87  | 1,07  | FeO                            |
| S       | 0,10        | –     | –     | 0,06       | –     | –     | 0,17                  | –     | –     | SO <sub>3</sub>                |
| Ti      | –           | 0,12  | –     | –          | 0,09  | –     | –                     | 0,24  | –     | TiO <sub>2</sub>               |
| C       | –           | –     | 15,03 | –          | –     | 12,41 | –                     | –     | 34,97 | CO <sub>2</sub>                |
| O       | 40,57       | 43,44 | 34,83 | 58,65      | 61,79 | 48,99 | 0,94                  | 12,93 | –     | H <sub>2</sub> O               |

Дифрактограммы и штрихграммы компонентов галлуазита и доломита показаны на рис. 1 (ввиду рентгеноаморфности обсидиана его дифрактограмма не представлена).



**Рис. 1.** Дифрактограммы и штрихграммы компонентов галлуазита (а) и доломита (б)

Согласно результатам рентгенографического анализа, межплоскостные расстояния, равные 10,48; 9,77; 4,41; 3,62; 1,48 Å, и их интенсивности указывают на преобладание в природном образце галлуазитовой фазы.

Исследование фаз в исходном образце показало, что в его состав входит галлуазитовая (69,5 %) и монтмориллонитовая (27,5 %) фазы и кварц (3 %). Межплоскостные расстояния 15,3; 11,5; 4,50; 3,07; 2,62 Å свидетельствуют о содержании монтмориллонита, расстояния 4,24; 3,34; 2,45; 2,28; 1,81 Å — о присутствии кварца. По данным рентгенографического анализа доломита, кроме основного минерала (доломита), в его составе также присутствует в небольшом количестве кварц. Характерные для чистого доломита межплоскостные расстояния (3,70; 3,34; 2,88; 2,19; 1,78 Å) имеют ярко выраженные интенсивности на дифрактограмме образца. Наличие межплоскостных расстояний, характерных для кварца, свидетельствует о его вхождении в состав минерального образца доломита.

Синтез выполнен в стальных автоклавах типа Мори рабочим объемом 18 см<sup>3</sup> при степени заполнения  $F = 0,8$ . Реакция протекала в статическом режиме без создания перепада температуры. Отношение объемов твердой фазы к жидкой составляло 1 : 5, массовое соотношение галлуазита, доломита и обсидиана — 1 : 1 : 1. В качестве щелочного раствора использованы растворы NaOH различной концентрации. Гидротермальный синтез левинита выполнен при температуре 100...300 °C и концентрации NaOH 10...35 % в течение 50...150 ч.

Максимальная степень кристалличности (100 %) и фазовая чистота левинита достигаются при температуре 200 °C, концентрации щелочного раствора 20...30 % и времени синтеза 100 ч.

Идентификация фазового состава исходных и полученных продуктов проведена с использованием комплекса физико-химических методов: рентгенофазового, элементного, дериватографического, ИК спектроскопического анализов и сканирующей электронной микроскопии. Рентгенофазовый анализ выполнен на дифрактометре *2D PHASER* (Bruker Corporation, США, излучение  $\text{CuK}\alpha$ ,  $2\theta = 20...80^\circ$ ). ИК-спектры регистрировали на ИК-спектрометре *Nicolet iS10* (Thermo Fisher Scientific, США) в интервале значений частоты 400...5000 см<sup>-1</sup>. Образцы для ИК-исследований приготовлены методом прессования таблеток с KBr в массовом соотношении 1 мг цеолита / 400 мг KBr с использованием ручного пресса производства *PIKE Technologies* (США). Термическая стабильность и фазовые переходы изучены на дериватографе *NETZSCH STA 449 F3 Jupiter* (NETZSCH-Gerätebau GmbH, Германия) в динамическом режиме при температуре 20...1000 °C. Элементный состав определен в аппарате *Triton XL Cryofree Dilution Refrigerator* (Oxford Instruments plc, Великобритания). Сканирующий электронный микроскопический (СЭМ) анализ выполнен на микро-

скопе высокого разрешения (30 000×) *Hitachi TM-3000* (Hitachi, Япония). Низковакуумный режим позволяет исследовать образцы без предварительного осаждения.

Степень кристалличности рассчитана на основе кривых поглощения ИК-спектров. Для определения степени кристалличности цеолита измерена интенсивность потока облучения пропорционально минимальному и максимальному значению пропускания образца цеолита в диапазоне значений  $400...1200\text{ см}^{-1}$  и определена плотность пропускания [16]  $D = \lg T_{\max} - \lg T_{\min}$ , где  $T_{\max}$  — максимальное значение пропускания ( $T_{498}$ ,  $T_{687}$ ,  $T_{830}$ ,  $T_{1100}$ );  $T_{\min}$  — минимальное значение пропускания ( $T_{460}$ ,  $T_{645}$ ,  $T_{781}$ ,  $T_{1050}$ ).

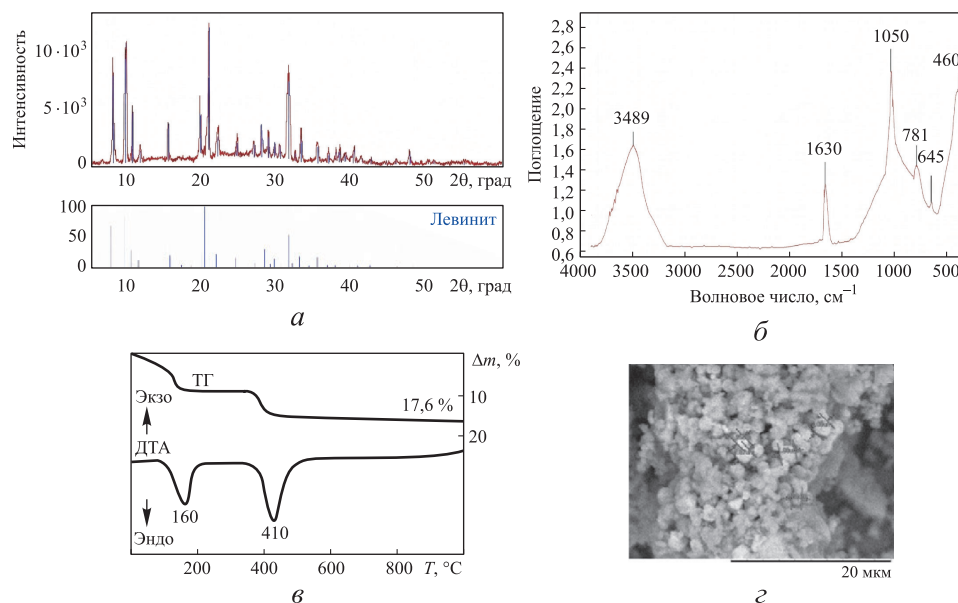
Полученные значения степени кристалличности по ИК-спектру подтверждены рентгенофазовым анализом. Степень кристалличности образцов рассчитана по относительным интенсивностям пиков. Согласно стандарту Американского общества по испытаниям и материалам (ASTM E384–23. Standard Test Method for Knoop and Vickers Hardness of Materials. ASTM International, 2023), степень кристалличности определяется по формуле [17]:

$$\begin{aligned} \text{Степень кристалличности} &= \\ &= \frac{\text{Общая интенсивность пиков образца}}{\text{Общая интенсивность пиков стандарта}} \cdot 100 \%. \end{aligned}$$

**Результаты.** В системе галлуазит–доломит–обсидиан NaOH–ТМАОН при гидротермальных условиях получен имеющий прикладное значение цеолит левинитового типа. Процесс кристаллизации левинита изучен в присутствии четвертичного гидроксида аммония ТМАОН. Следует отметить, что использование органического структурообразующего агента стимулирует формирование требуемой пористой и гидрофобной высококремнеземной структуры, что в свою очередь важно с позиции термической стабильности и полезности в каталитических реакциях, а также значительно влияет на кинетику кристаллизации [18–21].

Дифрактограмма, ИК-спектр, термограмма и микрофотография полученного левинита приведены на рис. 2.

По данным рентгенофазового анализа (рис. 2, а), левинит кристаллизуется в ромбоэдрической сингонии с параметрами  $a = 10,75\text{ Å}$ ,  $\alpha = 76^\circ 25'$ . Углы Брэгга  $2\theta$  левинита соответствуют значениям 8,56; 10,85; 11,53; 20,77; 21,77; 31,95; 34,14; 35,62°, что подтверждается результатами, приведенными в [22, 23].

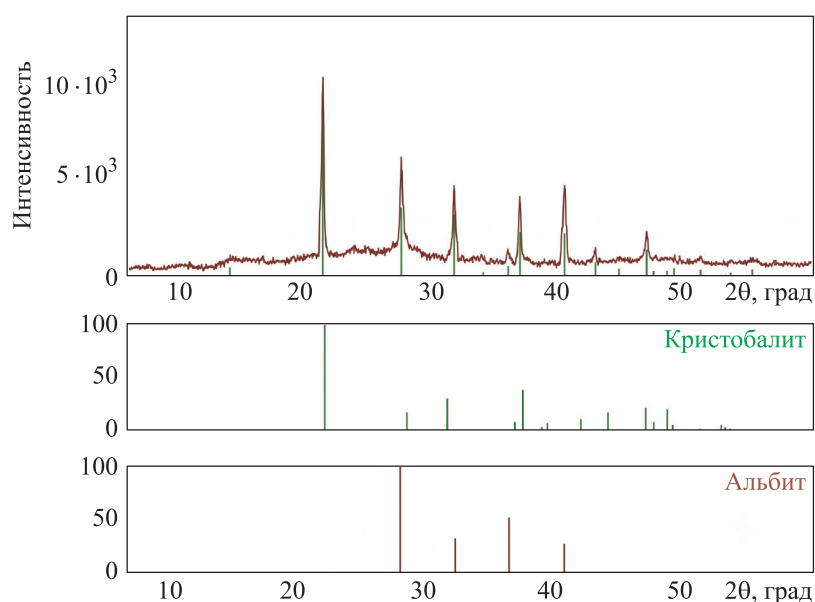


**Рис. 2.** Дифрактограмма (а), ИК-спектр (б), термограмма (в) и микрофотография (з) полученного левинита

Результаты ИК спектроскопического анализа (рис. 2, б) подтверждают формирование каркасной структуры левинита. В диапазоне значений  $250...1400\text{ см}^{-1}$  зафиксированы интенсивные полосы поглощения, отвечающие валентным и деформационным колебаниям связей Si–O–Al, Si–O–Si, Si–O, Si–Al в алюмосиликатных тетраэдрах [24]. Согласно [25], ИК-спектры цеолитов характеризуются двумя типами колебаний: 1) внутренними колебаниями первичных структурных единиц  $\text{TO}_4$ , где Т — катионы  $\text{Si}^{4+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ; 2) колебаниями по внешним связям между тетраэдрами  $\text{TO}_4$ . Внутренние колебания тетраэдров проявляются в следующих областях: асимметричные валентные ( $1250...950\text{ см}^{-1}$ ), симметричные валентные ( $720...650\text{ см}^{-1}$ ) и деформационные ( $500...420\text{ см}^{-1}$ ) колебания связей Т–О. Колебания внешних связей включают в себя асимметричные валентные ( $1150...1050\text{ см}^{-1}$ ), симметричные валентные ( $820...750\text{ см}^{-1}$ ), колебания двойных колец каркаса ( $650...500\text{ см}^{-1}$ ). Специфическая полоса при  $460\text{ см}^{-1}$  обусловлена колебаниями основной структурной единицы, характерной для каркаса левинита. Полосы при  $781$  и  $645\text{ см}^{-1}$  отнесены к асимметричным, симметричным валентным и изгибным колебаниям связей Т–О. Наличие гидратной воды в структуре подтверждается серией полос: изгибные колебания ОН-групп в узком диапазоне  $1600...1660\text{ см}^{-1}$  (с максимумом при  $1630\text{ см}^{-1}$ ); область

3000...3500  $\text{см}^{-1}$  с широкой полосой валентных колебаний молекулярной и адсорбированной воды с выраженным экстремумом при 3489  $\text{см}^{-1}$ .

Результаты дериватографического анализа (рис. 2, в) показали, что дегидратация левинита происходит за два этапа с эндотермическими эффектами при температуре 100...500 °С и с потерей массы 17,6 %. Первый эндотермический эффект с максимумом при температуре 160 °С относится к молекулам воды, находящимся в полостях структуры, второй с максимумом при температуре 410 °С — к кристаллической воде в структуре левинита. Полная дегидратация завершается при температуре 500 °С. Согласно результатам рентгенографического анализа, структура левинита термически стабильна до температуры 1000 °С, при повышении температуры (> 1100 °С) происходит разрушение структуры с образованием альбита и кристобалита (рис. 3).



**Рис. 3.** Дифрактограмма и штрихграммы компонентов альбита и кристобалита

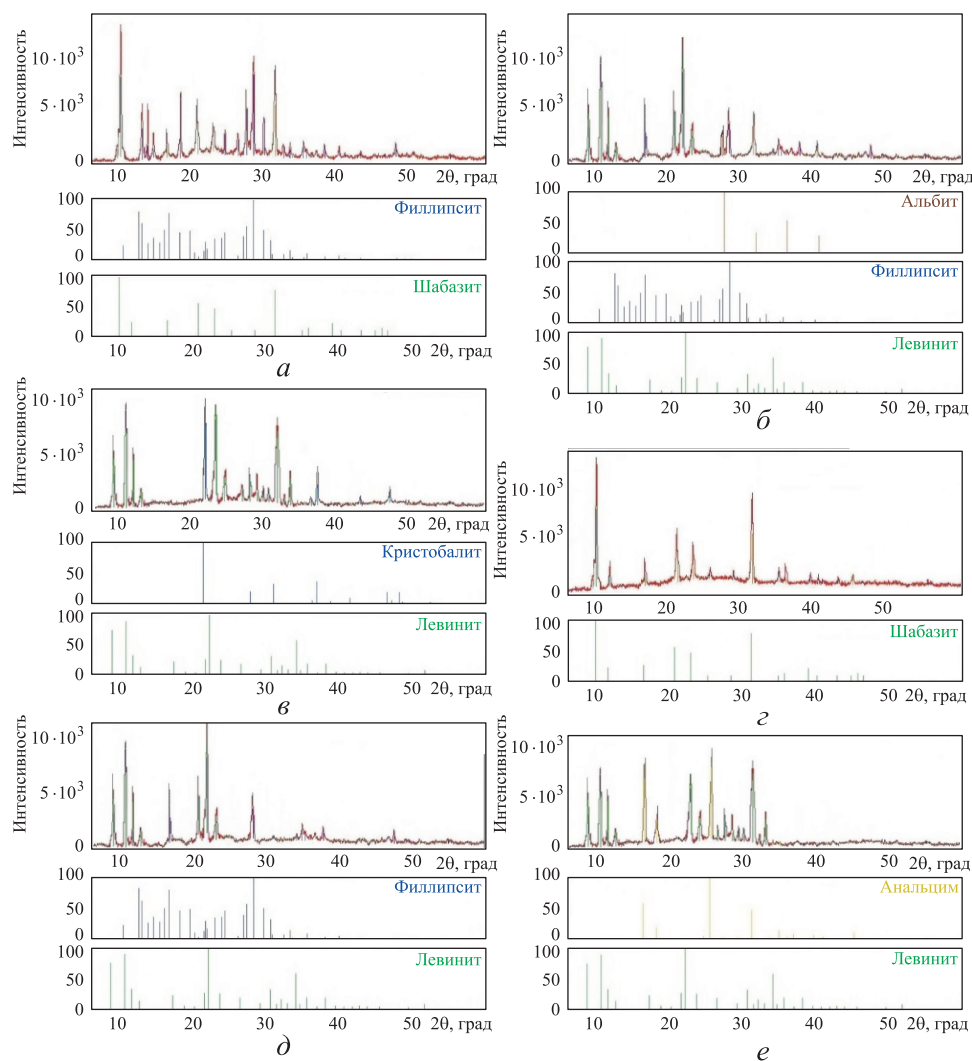
Изучены регидратационные особенности синтезированного левинита. Левинит показал обратимую дегидратацию при температуре 100...500 °С, достигая полной регидратации за 48 ч.

Результаты микроскопического анализа левинита (рис. 2, г) показали сферическую морфологию кристаллов с относительно одинаковым размером.

Полученные результаты позволяют утверждать, что оптимальные параметры синтеза (температура 200 °С, концентрация щелочного раствора

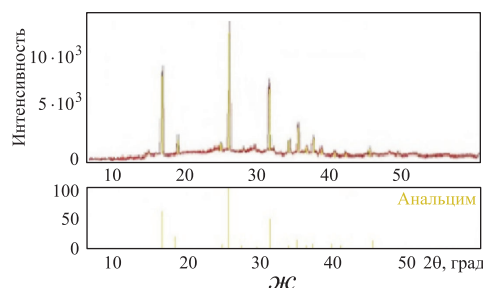
20...30 %, время обработки 100 ч) обеспечивают формирование чистого левинита со 100%-ной степенью кристалличности.

Изучено влияние температуры, концентрации щелочного раствора и времени обработки на процесс получения левинита. Дифрактограммы и штрихграммы продуктов кристаллизации при различных условиях приведены на рис. 4.



**Рис. 4 (начало).** Дифрактограммы и штрихграммы продуктов кристаллизации:

- a* — филлипсит + шабазит (при температуре менее 200 °С);
- б* — филлипсит + левинит + альбит (при температуре 200...300 °С);
- в* — левинит + кристобалит (при концентрации NaOH 10...20 %); *г* — шабазит (при концентрации NaOH 30...35 %); *д* — филлипсит + левинит (при времени обработки менее 100 ч); *е* — левинит + анальцим (при времени обработки 100...150 ч)



**Рис. 4 (окончание).** Дифрактограммы и штрихграммы продуктов кристаллизации:

жс — анальцим (при времени обработки более 150 ч)

Изучение влияния температуры на процесс кристаллизации левинита показало, что изменение оптимальных значений приводит к образованию побочных фаз, а именно снижение температуры до 100...200 °С способствует образованию филлипситовой и шабазитовой фаз (рис. 4, а), повышение температуры до 200...300 °С содействует получению смеси левинитовой, филлипситовой с альбитовой фазой (рис. 4, б).

Как отмечено выше, оптимальной областью существования чистого левинита является концентрация щелочного раствора 20...30 %. Концентрация NaOH менее 20 % (10...20 %) приводит к формированию низкокristаллической левинитовой и кристобалитовой фаз (рис. 4, в). Повышение концентрации NaOH более 30 % (30...35 %) способствует образованию чистой шабазитовой фазы (рис. 4, г).

Согласно данным, для получения левинита со 100%-ной степенью кристалличности необходимо время обработки 100 ч. Процесс кристаллизации изучен в интервале 50...150 ч. При времени обработки менее 100 ч (50...100 ч), согласно рентгенофазовому анализу, в продуктах оказались низкокristаллизованная левинитовая и филлипситовая фазы (рис. 4, д). Во временном интервале 100...150 ч в продуктах кристаллизации присутствуют левинитовая и анальцимовая фазы (рис. 4, е). Увеличение времени обработки (> 150 ч) способствует кристаллизации чистой анальцимовой фазы (рис. 4, ж).

**Заключение.** Впервые на основе природных минералов Нахичеванской Автономной Республики (обсидиана, галлуазита и доломита) в присутствии ТМАОН синтезирован практически важный цеолит — левинит. Синтез проведен в стальных автоклавах типа Мори рабочим объемом 18 см<sup>3</sup> при степени заполнения 0,8. Реакция протекала в статическом режиме без создания перепада температуры. Отношение объемов твердой

фазы к жидкой составляло 1 : 5, массовое отношение галлуазита, доломита и обсидиана — 1 : 1 : 1.

Эксперименты по гидротермальному синтезу левинита проведены при температуре 100...300 °С с концентрацией щелочного термального раствора NaOH 10...35 % в течение 50...150 ч. Оптимальные параметры условий синтеза левинита со 100%-ной степенью кристалличности и фазовой чистотой: температура 200 °С, концентрация NaOH 20...30 %, время обработки 100 ч. Контролирование условий синтеза способствует получению цеолитов с заданными свойствами и расширяет области их применения.

Установлено, что синтезированный левинит термически устойчив (до 1100 °С), а дегидратированный при температуре 100...500 °С продукт полностью регидратируется в течение 48 ч.

Показано, что при температуре менее 200 °С в продуктах кристаллизации присутствуют филлипситовая и шабазитовая фазы, а при температуре более 200 °С (200...300 °С) — левинитовая, филлипситовая и альбитовая фазы. При концентрации термального раствора менее 20 % имеют место низкокristалличная левинитовая и кристобалитовая фазы, а более 30 % — чистая шабазитовая фаза. При времени обработки менее 100 ч получают низкокristаллизованные левинитовую и филлипситовую фазы, в диапазоне 100...150 ч — левинитовую и анальцимовую фазы, более 150 ч — чистую анальцимовую фазу.

## ЛИТЕРАТУРА

- [1] Arletti R., Vezzalini G., Quartieri S., et al. A new framework topology in the dehydrated form of zeolite levyne. *Am. Mineral.*, 2013, vol. 98, no. 11-12, pp. 2063–2074. DOI: <https://doi.org/10.2138/am.2013.4583>
- [2] Ballirano P., Cametti G. Crystal chemical and structural investigation of levyne-Na. *Mineral. Mag.*, 2013, vol. 77, no. 7, pp. 2887–2899. DOI: <https://doi.org/10.1180/minmag.2013.077.7.01>
- [3] Cametti G., Scheinost A., Churakov S. Cd<sup>2+</sup> incorporation in small-pore LEV/ERI intergrown zeolites: a multi-methodological study. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2021, vol. 313, art. 110835. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2020.110835>
- [4] Haiyan Z., Chengguang Y., Longfeng Z., et al. Organotemplate-free and seed-directed synthesis of levyne zeolite. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2012, vol. 155, pp. 1–7. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2011.12.051>
- [5] Lohse U., Vogt F., Richter-Mendau J. Synthesis and characterization of the levyne-like structure sapo-35, prepared with cyclohexylamine as templating agent. *Cryst. Res. Technol.*, 1993, vol. 28, no. 8, pp. 1101–1107. DOI: <https://doi.org/10.1002/crat.2170280812>

- [6] Tuoto C.V., Nagy B.N., Nastro A. Synthesis and characterization of levyne type zeolite obtained from gels with different  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  ratios. *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 1997, vol. 105, pp. 213–220. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0167-2991\(97\)80558-7](https://doi.org/10.1016/S0167-2991(97)80558-7)
- [7] De Luca P., Violante D., Vuono D., et al. Synthesis and characterization of Al, B-levyne type crystals from gels containing methyl-quinuclidinium ions. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2004, vol. 71, no. 1-3, pp. 39–49. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2004.03.010>
- [8] Moshoeshe M., Nadiye-Tabbiruka M.S., Obuseng V. A review of the chemistry, structure, properties and applications of zeolites. *Am. J. Mater. Sci.*, 2017, vol. 7, no. 5, pp. 196–221. DOI: <https://doi.org/10.5923/j.materials.20170705.12>
- [9] Naomichi H., Kenta I., Yusuke N., et al. Role of sodium cation during aging process in the synthesis of LEV-type zeolite. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2019, vol. 284, pp. 82–89. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2019.03.051>
- [10] Funase N., Tanigawa T., Yamasaki Y., et al. Thermally stable nanosized LEV zeolites synthesized by hydrothermal conversion of FAU zeolites in the presence of N,N-dimethylpiperidinium cations. *J. Mater. Chem. A*, 2017, vol. 5, no. 36, pp. 19245–19254. DOI: <https://doi.org/10.1039/C7TA04988A>
- [11] Al Atrach J., Aitblal A., Amedlous A., et al. Exploring a novel adsorbent for  $\text{CO}_2$  capture and gas separation. *ACS Appl. Mater. Interfaces.*, 2025, vol. 17, no. 4, pp. 7119–7130. DOI: <https://doi.org/10.1021/acsami.4c18745>
- [12] Min J.G., Kemp K.C., Hong S.B. Propylene/propane separation on a ferroaluminosilicate levyne zeolite. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2020, vol. 294, art. 109833. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2019.109833>
- [13] Venkatathri N., Yoo J.W. Synthesis, characterization and catalytic properties of a LEV type silicoaluminophosphate molecular sieve, SAPO-35 from aqueous media using aluminium isopropoxide and hexamethyleneimine template. *Appl. Catal. A*, 2008, vol. 340, no. 2, pp. 265–270. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2008.02.026>
- [14] Jeon H.-Y., Shin C.-H., Jung H.J., et al. Catalytic evaluation of small-pore molecular sieves with different framework topologies for the synthesis of methylamines. *Appl. Catal. A*, 2006, vol. 305, no. 1, pp. 70–78. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2006.02.044>
- [15] Mgbemere H.E., Ekpe I.C. Zeolite synthesis, characterization and application areas: a review. *Int. J. Environ. Sci.*, 2017, vol. 6, no. 10, pp. 45–59.
- [16] Rayalu S., Udhoji J., Meshram S., et al. Estimation of crystallinity in flyash-based zeolite-A using XRD and IR spectroscopy. *Curr. Sci. India*, 2005, vol. 89, no. 12, pp. 2147–2151.
- [17] Ayoola A.A., Hymore F.K., Omodara J.O., et al. Effect of crystallisation time on the synthesis of zeolite from elefun kaolinite clay. *IJAER*, 2017, vol. 12, no. 21, pp. 10981–10988.

- [18] Simancas R., Dari D., Navarro M.T., et al. Modular organic structure-directing agents for the synthesis of zeolites. *Sci.*, 2010, vol. 330, no. 6008, pp. 1219–1222. DOI: <https://doi.org/10.1126/science.1196240>
- [19] Oleksiak M.D., Rimer J.D. Synthesis of zeolites in the absence of organic structure-directing agents: factors governing crystal selection and polymorphism. *Rev. Chem. Eng.*, 2014, vol. 30, no. 1, pp. 1–49. DOI: <https://doi.org/10.1515/revce-2013-0020>
- [20] Burton A.W., Zones S.I. Organic molecules in zeolite synthesis: their preparation and structure-directing effects. Chapter 5. *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 2007, vol. 168, pp. 137–179. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0167-2991\(07\)80793-2](https://doi.org/10.1016/S0167-2991(07)80793-2)
- [21] Pour Z.A., Sebakhy Kh.O. A review on the effects of organic structure-directing agents on the hydrothermal synthesis and physicochemical properties of zeolites. *Chemistry*, 2022, vol. 4, no. 2, pp. 431–446. DOI: <https://doi.org/10.3390/chemistry4020032>
- [22] Treacy M.M.J., Higgins J.B. Collection of simulated XRD powder patterns for zeolites. Elsevier, 2001.
- [23] Mamedova G.A. Influence of synthesis conditions on clinoptilolitic zeolite crystallization. *Glass Ceram.*, 2021, vol. 78, no. 3-4, pp. 255–258. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10717-021-00370-4>
- [24] Byrappa K. Characterization of zeolites by Infrared Spectroscopy. *Asian J. Chem.*, 2007, vol. 19, no. 6, pp. 4933–4935.
- [25] Krol M., Mozgawa W., Jastrzbski W., et al. Application of IR spectra in the studies of zeolites from D4R and D6R structural groups. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2012, vol. 156, pp. 181–188. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2012.02.040>

**Аббасов Алиаддин Дайан оглы** — д-р хим. наук, член-корр. НАНА, доцент кафедры химии НГУ (Азербайджанская Республика, AZ7012, Нахичевань, Университетский городок).

**Мамедова Гюнель Аслан кызы** — PhD. (хим.), доцент, заведующая лабораторией «Сорбционные процессы» МНО АР ИПР (Азербайджанская Республика, AZ 7000, Нахичевань, пр-т Г. Алиева д. 35).

**Мамедова Физза Садых кызы** — PhD. (хим.), доцент, заведующая лабораторией «Гидрогеология и минеральные воды» МНО АР ИПР (Азербайджанская Республика, AZ 7000, Нахичевань, пр-т Г. Алиева д. 35).

**Просьба ссылаться на эту статью следующим образом:**

Аббасов А.Д., Мамедова Г.А., Мамедова Ф.С. Синтез цеолита левинита и исследование влияния различных факторов на процесс кристаллизации в природной системе галлуазит–доломит–обсидиан. *Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана. Сер. Естественные науки*, 2026, № 4 (127), с. 58–73. EDN: RBHDSY

## SYNTHESIS OF LEVYNITE ZEOLITE AND INVESTIGATION THE INFLUENCE OF VARIOUS FACTORS ON THE CRYSTALLIZATION PROCESS IN NATURAL HALLOYSITE–DOLOMITE–OBSIDIAN SYSTEM

A.D. Abbasov<sup>1</sup>

elieddinabbasov@ndu.edu.az

G.A. Mamedova<sup>2</sup>

gunelmamadova@mail.ru

F.S. Mammadova<sup>2</sup>

fizze.mammadova@mail.ru

<sup>1</sup> Nakhchivan State University, Nakhchivan, Azerbaijan Republic

<sup>2</sup> Ministry of Science and Education of Azerbaijan Republic Institute of Natural Resources, Nakhchivan, Azerbaijan Republic

### Abstract

The article presents the synthesis of a phase-pure levynite-type zeolite with 100 % crystallinity based on the mineral resources of the Nakhchivan Autonomous Republic. The influence of temperature, alkaline activator concentration, and hydrothermal treatment duration on the crystallization rate and selectivity of levynite-type zeolite formation was studied. It was shown that hydrothermal treatment was studied in the temperature range of 100–300 °C, in a solution NaOH with a concentration of 10–35 % for 50–150 h. The optimal crystallization parameters ensuring 100 % crystallinity and phase purity of levynite were established: temperature of 200 °C, concentration NaOH of 20–30 %, and treatment time of 100 hours. The starting components and products were subjected to a comprehensive study using X-ray phase analysis, IR spectral analysis, derivatographic analysis, elemental analysis, and scanning electron microscopy. The data obtained showed that deviations from optimal synthesis parameters lead to a decrease in process selectivity and the formation of side phases. These studies are consistent with modern trends in the development of green technologies and sustainable environmental management, create a scientific basis for further research, improve the development of new systems in zeolite synthesis, and facilitate the discovery of new ways to create cheaper and more efficient catalysts and adsorbents

### Keywords

*Hydrothermal synthesis, mineral, X-ray analysis, zeolite, structure-forming agent, levynite, alkaline solution*

Received 08.09.2025

Accepted 03.06.2026

© Author(s), 2026

## REFERENCES

- [1] Arletti R., Vezzalini G., Quartieri S., et al. A new framework topology in the dehydrated form of zeolite levyne. *Am. Mineral.*, 2013, vol. 98, no. 11-12, pp. 2063–2074. DOI: <https://doi.org/10.2138/am.2013.4583>
- [2] Ballirano P., Cametti G. Crystal chemical and structural investigation of levyne-Na. *Mineral. Mag.*, 2013, vol. 77, no. 7, pp. 2887–2899. DOI: <https://doi.org/10.1180/minmag.2013.077.7.01>
- [3] Cametti G., Scheinost A., Churakov S. Cd<sup>2+</sup> incorporation in small-pore LEV/ERI intergrown zeolites: a multi-methodological study. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2021, vol. 313, art. 110835. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2020.110835>
- [4] Haiyan Z., Chengguang Y., Longfeng Z., et al. Organotemplate-free and seed-directed synthesis of levyne zeolite. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2012, vol. 155, pp. 1–7. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2011.12.051>
- [5] Lohse U., Vogt F., Richter-Mendau J. Synthesis and characterization of the levyne-like structure sapo-35, prepared with cyclohexylamine as templating agent. *Cryst. Res. Technol.*, 1993, vol. 28, no. 8, pp. 1101–1107. DOI: <https://doi.org/10.1002/crat.2170280812>
- [6] Tuoto C.V., Nagy B.N., Nastro A. Synthesis and characterization of levyne type zeolite obtained from gels with different SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ratios. *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 1997, vol. 105, pp. 213–220. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0167-2991\(97\)80558-7](https://doi.org/10.1016/S0167-2991(97)80558-7)
- [7] De Luca P., Violante D., Vuono D., et al. Synthesis and characterization of Al, B-levyne type crystals from gels containing methyl-quinuclidinium ions. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2004, vol. 71, no. 1-3, pp. 39–49. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2004.03.010>
- [8] Moshoeshe M., Nadiye-Tabbiruka M.S., Obuseng V. A review of the chemistry, structure, properties and applications of zeolites. *Am. J. Mater. Sci.*, 2017, vol. 7, no. 5, pp. 196–221. DOI: <https://doi.org/10.5923/j.materials.20170705.12>
- [9] Naomichi H., Kenta I., Yusuke N., et al. Role of sodium cation during aging process in the synthesis of LEV-type zeolite. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2019, vol. 284, pp. 82–89. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2019.03.051>
- [10] Funase N., Tanigawa T., Yamasaki Y., et al. Thermally stable nanosized LEV zeolites synthesized by hydrothermal conversion of FAU zeolites in the presence of N,N-dimethylpiperidinium cations. *J. Mater. Chem. A*, 2017, vol. 5, no. 36, pp. 19245–19254. DOI: <https://doi.org/10.1039/C7TA04988A>
- [11] Al Atrach J., Aitblal A., Amedlous A., et al. Exploring a novel adsorbent for CO<sub>2</sub> capture and gas separation. *ACS Appl. Mater. Interfaces.*, 2025, vol. 17, no. 4, pp. 7119–7130. DOI: <https://doi.org/10.1021/acsami.4c18745>
- [12] Min J.G., Kemp K.C., Hong S.B. Propylene/propane separation on a ferroaluminosilicate levyne zeolite. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2020, vol. 294, art. 109833. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2019.109833>

- [13] Venkatathri N., Yoo J.W. Synthesis, characterization and catalytic properties of a LEV type silicoaluminophosphate molecular sieve, SAPO-35 from aqueous media using aluminium isopropoxide and hexamethyleneimine template. *Appl. Catal. A*, 2008, vol. 340, no. 2, pp. 265–270. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2008.02.026>
- [14] Jeon H.-Y., Shin C.-H., Jung H.J., et al. Catalytic evaluation of small-pore molecular sieves with different framework topologies for the synthesis of methylamines. *Appl. Catal. A*, 2006, vol. 305, no. 1, pp. 70–78. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2006.02.044>
- [15] Mgbemere H.E., Ekpe I.C. Zeolite synthesis, characterization and application areas: a review. *Int. J. Environ. Sci.*, 2017, vol. 6, no. 10, pp. 45–59.
- [16] Rayalu S., Udhoji J., Meshram S., et al. Estimation of crystallinity in flyash-based zeolite-A using XRD and IR spectroscopy. *Curr. Sci. India*, 2005, vol. 89, no. 12, pp. 2147–2151.
- [17] Ayoola A.A., Hymore F.K., Omodara J.O., et al. Effect of crystallisation time on the synthesis of zeolite from elefun kaolinite clay. *IJAER*, 2017, vol. 12, no. 21, pp. 10981–10988.
- [18] Simancas R., Dari D., Navarro M.T., et al. Modular organic structure-directing agents for the synthesis of zeolites. *Sci.*, 2010, vol. 330, no. 6008, pp. 1219–1222. DOI: <https://doi.org/10.1126/science.1196240>
- [19] Oleksiak M.D., Rimer J.D. Synthesis of zeolites in the absence of organic structure-directing agents: factors governing crystal selection and polymorphism. *Rev. Chem. Eng.*, 2014, vol. 30, no. 1, pp. 1–49. DOI: <https://doi.org/10.1515/revce-2013-0020>
- [20] Burton A.W., Zones S.I. Organic molecules in zeolite synthesis: their preparation and structure-directing effects. Chapter 5. *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 2007, vol. 168, pp. 137–179. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0167-2991\(07\)80793-2](https://doi.org/10.1016/S0167-2991(07)80793-2)
- [21] Pour Z.A., Sebakhy Kh.O. A review on the effects of organic structure-directing agents on the hydrothermal synthesis and physicochemical properties of zeolites. *Chemistry*, 2022, vol. 4, no. 2, pp. 431–446. DOI: <https://doi.org/10.3390/chemistry4020032>
- [22] Treacy M.M.J., Higgins J.B. Collection of simulated XRD powder patterns for zeolites. Elsevier, 2001.
- [23] Mamedova G.A. Influence of synthesis conditions on clinoptilolitic zeolite crystallization. *Glass Ceram.*, 2021, vol. 78, no. 3-4, pp. 255–258. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10717-021-00370-4>
- [24] Byrappa K. Characterization of zeolites by Infrared Spectroscopy. *Asian J. Chem.*, 2007, vol. 19, no. 6, pp. 4933–4935.
- [25] Krol M., Mozgawa W., Jastrzbski W., et al. Application of IR spectra in the studies of zeolites from D4R and D6R structural groups. *Microporous Mesoporous Mater.*, 2012, vol. 156, pp. 181–188. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2012.02.040>

**Abbasov A.D.** — Dr. Sc. (Chem.), Corresponding Member of the ANAS, Assoc. Professor, Department of Chemistry, NSU (University campus, AZ 7012 Azerbaijan Republic).

**Mamedova G.A.** — PhD. (Chem.), Assoc. Professor, Head of the Sorption Processes Laboratory, Ministry of Science and Education of Azerbaijan Republic Institute of Natural Resources (prospekt H. Aliyeva 35, AZ 7000 Azerbaijan Republic).

**Mammadova F.S.** — PhD. (Chem.), Assoc. Professor, Head of the Hydrogeology and Mineral Waters Laboratory, Ministry of Science and Education of Azerbaijan Republic Institute of Natural Resources (prospekt H. Aliyeva 35, AZ 7000 Azerbaijan Republic).

**Please cite this article in English as:**

Abbasov A.D., Mamedova G.A., Mammadova F.S. Synthesis of levynite zeolite and investigation the influence of various factors on the crystallization process in natural halloysite–dolomite–obsidian system. *Herald of the Bauman Moscow State Technical University, Series Natural Sciences*, 2026, no. 4 (127), pp. 58–73 (in Russ.).  
EDN: RBHDSY