

**ВПЛИВ ІМПРЕГНУВАННЯ НІТРАТОМ НІКЕЛЮ НА ПОРИСТІ  
ХАРАКТЕРИСТИКИ HZSM-5**Патриляк Л. К.<sup>1</sup>, Крилова М. М.<sup>1</sup>, Попов М. В.<sup>2</sup>, Іваненко І. М.<sup>2</sup><sup>1</sup>Інститут біоорганічної хімії та нафтохімії НАН України, Київ, Україна<sup>2</sup>Кафедра хімічної технології неорганічних речовин та загальної хімічної технології  
Національного технічного університету України «КПІ ім. І. Сікорського»,  
Київ, Україна  
kpi\_yes@mail.ru

На сьогодні цеоліти широко використовують в ролі сорбентів та каталізаторів. Серед методів їх модифікації застосовують гідротермальний іонний обмін в рідкій фазі, твердофазний іонний обмін, імпрегнування. Одним із промислово використовуваних цеолітів є цеоліт типу пентасилу – ZSM-5. Нікель, будучи елементом VIII групи, у металічному стані проявляє гідруюче-дегідруючі властивості подібно до платини та паладію.

Тому метою роботи була оцінка зміни пористих властивостей цеоліту ZSM-5 в процесі введення до його складу різної кількості нікелю шляхом імпрегнування.

Водневу форму одержували на основі цеоліту ZSM-5 виробництва АТ «Сорбент» (м. Нижній Новгород, РФ, Si/Al = 20,5) шляхом трикратного іонного обміну нітратом амонію з подальшим прожарюванням при 500 °С. Просочування нітратом нікелю проводили із розрахунку 1, 5 та 15 % мас. нікелю на дегідратований зразок цеоліту. Пористі характеристики визначали за низькотемпературною адсорбцією/десорбцією азоту (–196 °С) з використанням автоматичного аналізатора Quantachrome.

Одержані ізотерми адсорбції/десорбції (рис. 1) є типовими для мікропористих сорбентів, для яких характерний крутий підйом в області низьких P/P<sub>0</sub>. Ізотерми відносяться до IVa типу з петлею гістерезису H4 за класифікацією IUPAC. Форма ізотерми та петлі гістерезису свідчать про адсорбцію не лише в мікропорах, але й на зовнішній поверхні кристалів та в мезопорах.

Як видно із розташування ізотерм та приведених у табл. 1 даних процес імпрегнування суттєво впливає на пористість досліджуваних зразків. Введення уже 1 % мас. нікелю зменшує питому поверхню на 50 м<sup>2</sup>/г. Доведення вмісту нікелю до 15 % мас. викликає зменшення поверхні майже у 3 рази. Причому закономірно, що при цьому в основному падає поверхня мікропор з 373 до 125 м<sup>2</sup>/г, тоді як зовнішня поверхня зменшується лише на 10 %.

Загальний об'єм пор зменшується в 2,3 рази, тоді як об'єм мікропор в 3 рази. Середній радіус пор за рахунок наявної мезопористості складає від 14 до 18 Å. Тоді як розмір мікропор найближчий до цеоліту ZSM-5 (5,4x5,6 Å) знайдено за теорією DFT – 6,4 Å. Тоді як за теоріями Дубініна-Радускевича, Ховарда-Кавазое, Сайто-Фолей та Дубініна-Астахова одержують суттєво нижчі результати – 2–4 Å. Цікаво, що розмір пор практично не змінюється в результаті імпрегнування солі нікелю. За Барретом-Джойнером-Халендою розмір мезопор складає 15–18 Å. Враховуючи суттєве падіння об'єму мікропор при відсутності видимих змін у їх розмірах доводиться припускати повне заповнення частини з них нітратом нікелю.

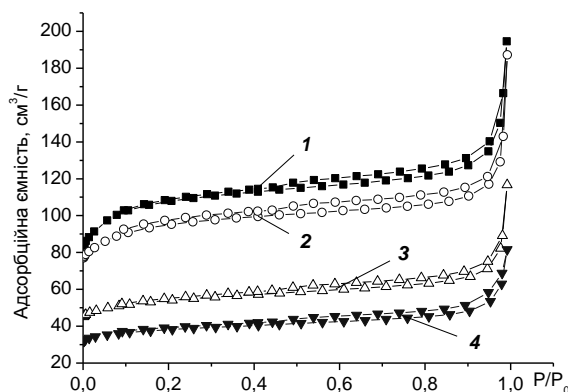


Рис. 1. Ізотерми адсорбції/десорбції азоту на зразках нікельвмісного цеоліту HZSM-5: 1 – HZSM-5; 2 – NiHZSM-1 %; 3 – NiHZSM-5 %; 4 – NiHZSM-15 %

Таблиця 1. Адсорбційні характеристики нікельвмісних пентасилів

Характеристика	Зразок			
	HZSM-5	NiHZSM-1%	NiHZSM-5%	NiHZSM-15%
$S_{\text{пит}}$ за БЕТ, $\text{м}^2/\text{г}$	405	355	204	144
$S_{\text{зовн.}}$ (t-метод), $\text{м}^2/\text{г}$	32	26	23	19
$S_{\text{мікр.}}$ (t-метод), $\text{м}^2/\text{г}$	373	329	180	125
Загальний об'єм пор, $\text{см}^3/\text{г}$	0,30	0,29	0,18	0,13
Об'єм мікропор (t-метод)	0,16	0,14	0,07	0,05
$R_{\text{сер.}}$ , Å	14.8	16.3	17.7	17.5
R за DR/DA, Å	2.9/4.2	2.6/4.0	2.9/4.2	3.2/4.4
R за НК/SF, Å	2.2/2.3	2.2/2.3	2.2/2.3	2.2/2.3
R за ВЖН ад./дес., Å	15.6/18.8	15.6/18.8	15.6/18.8	17.4/18.8
R за DFT, Å	6.4	6.4	6.4	6.4

Таким чином, імпрегнування цеоліту типу ZSM-5 нітратом нікелю суттєво впливає на пористі характеристики останнього зменшуючи поверхню та об'єм мікропор практично не впливаючи при цьому на їх розмір.

1. Грег С. Адсорбция, удельная поверхность, пористость / Грег С., Синг К. // Пер. с англ. – М: Мир, 1984.

2. Rouquerol F. Adsorption by powders and porous solids. Principles, methodology and applications / Rouquerol F., Rouquerol J., Sing K. // San Diego: Academic Press. – 1999.