

**ПОЛУЧЕНИЕ МИКРО-МЕЗОПОРИСТЫХ АЛЮМОСИЛИКАТОВ
SBA-15/ZSM-5 ЧАСТИЧНОЙ ЦЕОЛИТИЗАЦИЕЙ SBA-15**

Баракوف Р. Ю., Щербань Н. Д., Яремов П. С., Филоненко С. Н., Цырина В. В.

Институт физической химии им. Л. В. Писаржевского НАН Украины

barakov.r.yu@gmail.com

В последние годы одной из наиболее актуальных задач в области химии цеолитоподобных катализаторов является поиск и разработка способов получения микро-мезопористых алюмосиликатов (ММАС). Эти материалы в определенной степени сочетают свойства цеолитов и мезопористых молекулярных сит (ММС), в частности, содержат сильные кислотные центры, а также мезопоры, наличие которых способствует повышению скорости диффузии и увеличению доступности каталитически активных центров для молекул реагентов. Перспективным подходом для получения ММАС является цеолитизация (кристаллизация в направлении образования цеолитной фазы) аморфного вещества каркаса ММС типа SBA-15 в присутствии молекулярного темплата (например, тетрапропиламмоний гидроксида, ТРАОН). Целью настоящей работы является выяснение влияния условий цеолитизации темплатсодержащего ММС SBA-15 на структурно-сорбционные и кислотные свойства полученных ММАС SBA-15/ZSM-5.

Цеолитизацию Si-SBA-15 (в ZSM-5) проводили пропиткой ММС водным раствором ТРАОН, который содержит гидроксоалюминат-ионы. Затем гель высушивали и подвергали термopаровой обработке (ТПО) (образцы находились в контакте с парами воды) при 100–120 °С. Подбор условий синтеза, в частности использование темплатсодержащего ММС, разбавленных растворов ТРАОН (мольное отношение ТРАОН/Si = 0,07–0,1), снижение температуры термopаровой обработки до 100–120 °С позволил провести частичную цеолитизацию SBA-15 и сохранить гексагональную мезоструктуру исходного материала. Это дало возможность увеличить концентрацию и силу доступных для объемных молекул кислотных центров Бренстеда (концентрация – до 32 мкмоль/г, 2,6-ди-*трет*-бутилпиридин полностью десорбируется при 400 °С) и Льюиса (концентрация 28–40 мкмоль/г, полная десорбция зонда – 400 °С) в полученных ММАС, по сравнению с исходным AlSi-SBA-15 (центры Бренстеда – 26 мкмоль/г, Льюиса – 13 мкмоль/г, полная десорбция зонда – 350 °С). Уменьшение отношения ТРАОН/Si в сухом геле от 0,1 до 0,07 приводит к увеличению степени пространственной упорядоченности мезоструктуры ММАС и, соответственно, к повышению степени однородности размеров мезопор.

Для выявления отличий в кислотности полученных ММАС от механических смесей фаз цеолита (ZSM-5) и ММС (AlSi-SBA-15), экспериментальные значения концентрации кислотных центров средней силы и сильных (по термопрограммированной десорбции аммиака) образцов были сопоставлены с соответствующими расчетными величинами, полученными исходя из предположения о присутствии отдельных фаз цеолита и ММС в ММАС. При относительно низких значениях степени цеолитизации (до 0,25) превышение поверхностной концентрации кислотных центров над расчетными величинами, вероятно, связано с наличием в образцах ММАС, кроме кристаллитов ZSM-5, также рентгеноаморфных прекурсоров цеолита, обладающих более высокой концентрацией кислотных центров, в сравнении с аморфным каркасом AlSi-SBA-15. При более высоких степенях цеолитизации (0,25–0,45) заниженные значения поверхностной концентрации кислотных центров в образцах ММАС в сравнении с расчетными величинами могут быть связаны с более высокой дисперсностью кристаллов цеолита в образцах ММАС, в сравнении с цеолитом ZSM-5 (средний размер ~1,5 мкм).