

Синтез, физико-химические и каталитические свойства фожазитов с микро-мезопористой структурой

Кожина О.В.

студентка

Химический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова

ok-lelka@mail.ru

Цеолиты со структурой фожазита являются основным компонентом катализатора процесса каталитического крекинга – самого крупнотоннажного и практически значимого процесса нефтепереработки. Около полувека получение катализаторов на основе фожазитов является одним из основных мировых каталитических производств. Вместе с тем проблема глубокой переработки нефти и превращений крупных углеводородных молекул делает актуальной задачу синтеза новых каталитических материалов на основе традиционных цеолитов, например, фожазита.

В данной работе в качестве способа модифицирования фожазита был выбран метод рекристаллизации цеолитов, основанный на частичном растворении цеолита в щелочном растворе с последующим объединением образующихся фрагментов в мезопористую фазу в присутствии мицелл ПАВ. Формирующиеся транспортные мезопоры облегчают доступ реагирующих молекул к активным центрам цеолита и отвод продуктов реакции из зоны реакции.

Цель настоящей работы заключалась в определении особенностей создания мезопористой структуры в материалах на основе фожазита и изучении физико-химических и каталитических свойств таких материалов. В качестве исходного цеолита в работе был использован образец промышленного dealюминированного фожазита с мольным отношением $Si/Al=37$. Физико-химические свойства полученных образцов были охарактеризованы с использованием методов низкотемпературной адсорбции-десорбции азота, ТПД аммиака, ИК-спектроскопии.

Показано, что формирование мезопор в фожазите происходит в очень мягких, по сравнению с цеолитами других структурных типов, условиях. Например, полное растворение цеолита и образованием мезопористого материала, не содержащего цеолитных фрагментов, происходит уже в 0.25 М растворе NaOH, в то время как dealюминированный морденит аналогичного химического состава устойчив в растворе с концентрацией 1 М. С использованием ИК-спектров образцов показано, что кристаллическая структура фожазита сохраняется при обработке исходного цеолита в щелочных растворах с концентрацией 0.02-0.15 М. Результаты химического анализа образцов продемонстрировали, что выбранный способ модифицирования не изменяет химический состав материала, отношение Si/Al в полученных образцах составило 36-38.

Изменения пористой структуры фиксировали с использованием метода низкотемпературной адсорбции-десорбции азота. В качестве количественной характеристики синтезированных материалов использовали отношение объема микропор в образцах к общему объему пор. Показано, что при увеличении концентрации обрабатывающего раствора щелочи от 0.02 до 0.15 М доля микропор снижается от 0.4 до 0.01. Предполагается, что низкая стабильность структуры фожазита в щелочных растворах связана с наличием дефектов в структуре dealюминированного фожазита.

Каталитические свойства фожазитов с микро-мезопористой структурой изучены в модельной реакции крекинга 1,3,5-триизопропилбензола в проточном реакторе при температуре 300°C.

Работа выполнена при поддержке фонда РФФИ (гранты 06-03-32914-а и 06-03-32830-а).