

## МЕЗОКЕУЕКТІ АЛЮМОСИЛИКАТТАР НЕГІЗІНДЕГІ КАТАЛИЗАТОРЛАРДЫҢ СИНТЕЗІ ЖӘНЕ ФИЗИКА-ХИМИЯЛЫҚ СИПАТТАМАЛАРЫ

Абдрасилова А.К., Абдильдина К.М., Василина Г.К., Классен И.А., Кустубаев Н.С.  
*ал-Фараби атындағы Қазақ Ұлттық университеті, Алматы, Қазақстан*

Мезокеуекті материалдар реттелген кеуектілігімен, меншікті беттік ауданымен және кеуек көлемінің ерекше құрылымының арқасында негізінен катализ, адсорбция, сепарация, сенсорлар және отын ұяшықтары салаларында қолданылады. Зерттеуге үлкен қызығушылық тудыратын мезокеуекті материалдардың бірі - мезокеуекті алюмосиликаттар, себебі олар n-алкандарды тармақталған изомерлерге айналдыру үшін катализатор ретінде кеңінен қолданылады. Мезокеуекті алюмосиликаттар орташа конверсия жылдамдығында (90-60%) изомеризация үрдісінің жоғары селективтілігіне (>75%) ықпал етеді, сонымен қатар оларды синтездеудің әртүрлі әдістерін қолдану арқылы олардың кеуегінің өлшемін реттеп, нәтижесінде цеолиттер және басқа катализаторлармен салыстырғанда үлкен молекулалық өлшем алуға болады.

Мезокеуекті алюмосиликаттардың сериясы дайындалып, олардың синтезі үшін гексадециламин құрылымдық темплат ретінде пайдаланылды. Мезокеуекті алюмосиликат синтезі тетраэтилортосиликат  $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$  және спирттің қатысуымен екіншілік алюминий бутоксид (екіншілік- $\text{BuO}$ ) $_3\text{Al}$ /алюминий триизопропилат  $\text{Al}(\text{i-OPr})_3$  сополиконденсациясы әдісіне негізделген. Синтезделген алюмосиликат массасы бойынша (%) 35/65 қатынасында белсендірілген бентонитпен араластырылды. Кептіру және термиялық өңдеуден өткен катализаторларды никель және молибден тұзының сулы ерітіндісінің есептік мөлшерімен сіңдіру әдісімен жүзеге асырылды.

Төмен температуралы азот адсорбциясы/десорбциясы әдісіне сәйкес изотермалар Брунауэр, Эммет және Теллер классификациясы бойынша IV типке жатады, оларда гистерезис тұзағының болуы мезокеуектерде болатын капиллярлық конденсациямен байланысты. Al-HMS үлгісі үшін азоттың адсорбция/десорбция изотермасы Ni/Al-HMS-H-бентонит және Mo/Al-HMS-H-бентонит үлгілерімен салыстырғанда кеңірек гистерезис контурымен сипатталуы Al-HMS кеуегінің өлшемі үлкен болуы ықтимал екенін көрсетеді. Мезокеуекті алюмосиликат негізіндегі катализаторлар үлгілерін никельмен және молибденмен промоторлау катализатордың құрылымдық сипаттамаларының айтарлықтай өзгеруіне әкеледі. Тиімді диаметрлер үшін кеуектер көлемінің таралу қисығында үш максимум байқалады, олардың біріне мезокеуекті алюмосиликатқа, екіншісіне бентонитке және үшіншісі ықпал ететін қоспаға сәйкес келеді. Меншікті бетінің ауданы, орташа кеуек диаметрі және кеуек көлемі  $511 \text{ м}^2/\text{г}$ -дан  $151,7 \text{ м}^2/\text{г}$  дейін,  $3,82 \text{ нм}$ -ден  $2,17 \text{ нм}$ -ге дейін және  $1,47 \text{ см}^3/\text{г}$ -дан  $0,21 \text{ см}^3/\text{г}$ -ға дейін төмендеді. Бұл нәтижелер Ni және Mo-ның көп бөлігі мезокеуектерге еніп, осы катализатордың кеуекті бетінде тұндырылғанын көрсетті.

Синтезделген материалдардың кеуекті құрылымының мезокеуектілігі мен реттілігін дәлелдеу үшін рентгендік шашырату әдісі қолданылды. Al-HMS мезокеуекті үлгісінің аз бұрышты шашырау рентгенограммасына сәйкес,  $2\theta$   $2,1^\circ$  бұрыштарының мәндері аймағында айқын шыңның болуы мезокеуекті құрылымның болуын көрсетеді. Сонымен қатар Mo/HMS-H-бентонит үлгісі үшін қарқындылық шыңы  $2,1^\circ$  аймағында байқалады, ал Ni/HMS-H-бентонит үшін -  $2,3^\circ$ , ол пайдаланылған сәулеленудің толқын ұзындықтары  $4,2 \text{ нм}$  және  $3,9 \text{ нм}$  аралық қашықтыққа сәйкес келеді.

Мезокеуекті алюмосиликаттардың бетіндегі Бронстед және Льюис қышқыл орталықтарының салыстырмалы беріктігін анықтау үшін адсорбцияланған пиридин үлгілерінің диффузды шағылысын Фурье түрлендірумен (DRIFT) ИҚ спектроскопиясына талдау жасалды. Зерттелген үлгілерде  $1445$ ,  $1490$  және  $1595 \text{ см}^{-1}$  кезінде жұтылу жолақтары байқалды. Спектрлердегі  $1445$  және  $1595 \text{ см}^{-1}$  кезінде байқалатын жолақтар Льюис қышқылдарының орталықтарында жұтылған сутегімен байланысқан пиридиннің болуымен түсіндіріледі. Шамамен  $1490 \text{ см}^{-1}$  байқалған жолақ Льюис орталықтарында да, Бронстед қышқылы орталықтарында да пиридиннің адсорбциясымен байланысты. Мезокеуекті алюмосиликатқа Ni (мас. 5%) және Mo (мас. 1%) енгізу  $1445$ ,  $1490$  және  $1595 \text{ см}^{-1}$