

以四乙基氢氧化铵-四甲基氯化铵为模板剂水热法合成 UZM-5 沸石

刘 艳, 李英霞, 李建伟, 陈标华

北京化工大学化工资源有效利用国家重点实验室, 北京 100029

摘要: 以四乙基氢氧化铵 (TEAOH)-四甲基氯化铵 (TMACl) 为复合模板剂, 采用静态水热法合成了 UZM-5 沸石。较为系统地考察了合成条件对 UZM-5 沸石的生长和晶化的影响, 并采用 X 射线衍射、红外光谱和热重等手段对样品进行了表征。结果表明, 在 $\text{SiO}_2:(0.16\sim0.5)\text{Al}_2\text{O}_3:(0.4\sim1.0)\text{TEAOH}:(0.06\sim0.13)\text{TMACl}:20\text{H}_2\text{O}$ 的初始反应物摩尔比条件下, 均能获得结晶良好的 UZM-5 沸石。适宜的晶化温度为 403~423 K, 过高的晶化温度将导致无定形产物的生成。当以硅溶胶为硅源时, 晶化只需 2 d, 而以硅酸或硅胶为硅源时则分别需要 4 d 和 5 d, 过长的晶化时间导致杂晶方钠石的生成。Na⁺ 的存在容易导致 UZM-9 沸石的生成, 影响产物的相选择性。

关键词: UZM-5 沸石; UZM-9 沸石; 四乙基氢氧化铵; 四甲基氯化铵; 水热法; 硅源; 钠离子

中图分类号: O643

文献标识码: A

Synthesis of UZM-5 Zeolite by a Hydrothermal Method Using Tetraethylammonium Hydroxide-Tetramethylammonium Chloride as Organic Templates

LIU Yan, LI Yingxia*, LI Jianwei, CHEN Biaohua

State Key Laboratory of Chemical Resource Engineering, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China

Abstract: The synthesis of UZM-5 zeolite by the hydrothermal method in the tetraethylammonium hydroxide (TEAOH)-tetramethylammonium chloride (TMACl) two-organic component system was studied. The products were characterized using X-ray diffraction, infrared spectroscopy, and thermogravimetry. The crystallization process and growth of UZM-5 zeolite were investigated. The results indicated that the UZM-5 zeolite could be synthesized when the initial mixture was $\text{SiO}_2:(0.16\sim0.5)\text{Al}_2\text{O}_3:(0.4\sim1.0)\text{TEAOH}:(0.06\sim0.13)\text{TMACl}:20\text{H}_2\text{O}$. Too high temperature was disadvantageous to the crystallization process. UZM-5 zeolite could be synthesized in the temperature range of 403–423 K. Too long time led to the crystallization of sodalite zeolite. The synthesis of UZM-5 zeolite with silica sol needs 2 days, while silicic acid 4 days and silica gel 5 days. A small amount of Na⁺ ions resulted in the crystallization of UZM-9 zeolite and had an effect on the phase selectivity.

Key words: UZM-5 zeolite; UZM-9 zeolite; tetraethylammonium hydroxide; tetramethylammonium chloride; hydrothermal method; silica source; sodium ion

UZM-5 沸石是具有 α 笼的低硅铝比 ($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 3\sim5$) 新型沸石, 由 UOP 公司在复合模板剂体系下, 通过静态水热法合成, 国际沸石协会给定其代码为 UFI; 研究表明, UZM-5 沸石在苯与烯烃的烷基化反应以及二甲苯的异构化反应中具有重要的应用价值^[1~4]。

Jan 等^[5]研究了 UZM-5 沸石的生长规律, 并通

过改变合成条件制备了具有不同表面形态和酸性质的 UZM-5 沸石, 但未指出模板剂的作用。Kim 等^[6]以四乙基氢氧化铵 (TEAOH)-四甲基氯化铵 (TMACl) 为复合模板剂, 合成了 UZM-5, UZM-9 及菱钾沸石, 发现温度和少量的无机阳离子会影响沸石的相选择性, 但未报道无机阳离子的具体作用和沸石的生长规律。国内研究者考察了 UZM-5 沸石

收稿日期: 2009-12-23.

联系人: 李英霞. Tel: (010)64412054; Fax: (010)64419619; E-mail: liyx@mail.buct.edu.cn

基金来源: 国家杰出青年基金 (20625621); 国家自然科学基金 (20676011).

合成条件的影响,认为模板剂用量是合成的关键,但并未涉及模板剂的作用机理^[7,8].

本文以 TEAOH-TMACl 为模板剂,采用静态水热法合成了 UZM-5 沸石,考察了模板剂、硅源、金属离子含量和温度等对 UZM-5 沸石合成的影响,探讨了沸石的生长及转晶规律.

1 实验部分

1.1 UZM-5 沸石的制备

将硅源(硅溶胶(40%, 青岛海洋化工有限公司)、硅胶或硅酸(除非特别说明,硅源采用硅酸))、仲丁醇铝(95%, 济南乐奇化工有限公司)和 TEAOH(35%, 杭州沿山化工有限公司)按一定比例混合,高速搅拌后倒入晶化釜,于 368 K 老化,取出晶化釜冷却,在老化液中加入一定量的 TMACl(99%, 天津市光复精细化工研究所),搅拌混合均匀,于一定温度下自压晶化.冷却后,过滤、洗涤、干燥,得到 UZM-5 沸石样品.

1.2 UZM-5 沸石的表征

样品的物相在德国 Bruker 公司 D8 FOCUS 型 X 射线衍射(XRD)仪上测定, $\text{Cu K}\alpha$ 辐射,管电压 40 kV,管电流 40 mA,扫描范围 $5^\circ\sim 35^\circ$.样品的红外光谱(FT-IR)测定在德国 Bruker 公司 TENSOR 27 型红外光谱仪上进行, KBr 压片,仪器分辨率为 4 cm^{-1} ,扫描次数 64.在法国 Setaram 公司 LCT 1390-8 型热重天平上进行差示扫描量热(DSC)分析,以 He 为载气, O_2 为辅助气,升温速率为 10 K/min .

2 结果与讨论

2.1 晶化温度和时间的影响

在物料配比为 $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMACl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:0.13:20$,晶化 4 d 的条件下,考察了晶化温度对合成沸石的影响.图 1 为所得样品的 XRD 谱.可以看出,在 403~423 K 可以生成 UZM-5 沸石,样品出现了 UZM-5 沸石的 (002), (101), (110), (112), (310) 和 (300) 晶面的特征峰,其强度和位置与文献[2,3]结果相吻合.随着晶化温度的升高,样品结晶度增加;但当温度达到 433 K 时,由于 TEA^+ 发生霍夫曼降解产生三乙胺,降低了混合液的 pH 值,影响了原料的溶解,而且失去了

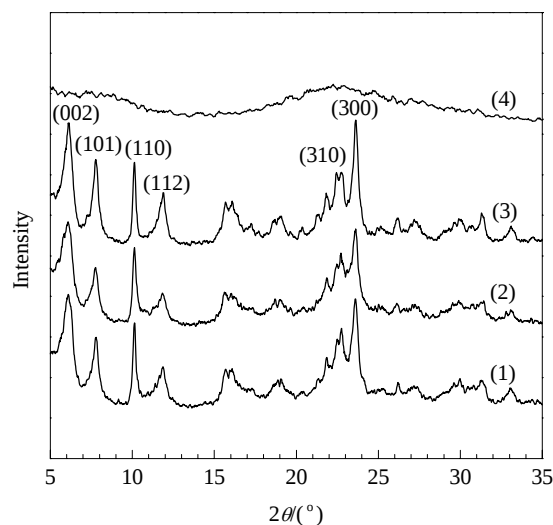


图 1 不同晶化温度下得到的 UZM-5 沸石样品的 XRD 谱
Fig. 1. XRD patterns of UZM-5 zeolite samples crystallized at different temperatures. (1) 403 K; (2) 413 K; (3) 423 K; (4) 433 K. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMACl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:0.13:20$ with silicic acid as silica source; 4 d. TEAOH: tetraethylammonium hydroxide; TMACl: tetramethylammonium chloride.

结构导向作用,导致样品为无定形^[6].

在物料配比不变,晶化温度为 413 K 的条件下,考察了晶化时间对合成沸石的影响.图 2 为所得样品的 XRD 谱.可以看出,晶化 2 d 后,开始出现 UZM-5 沸石的 (002), (110) 和 (310) 晶面的衍射峰,晶化 4 d 后相继出现 (101) 和 (112) 晶面的衍射峰.

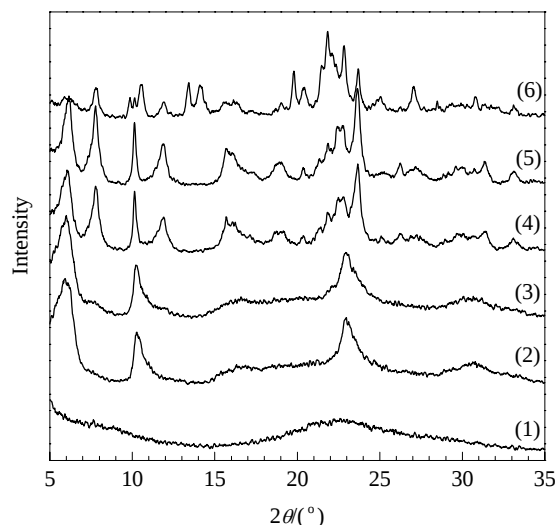


图 2 不同晶化时间得到的 UZM-5 沸石的 XRD 谱
Fig. 2. XRD patterns of UZM-5 zeolite samples crystallized for different time. (1) 1 d; (2) 2 d; (3) 3 d; (4) 4 d; (5) 5 d; (6) 6 d. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMACl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:0.13:20$, 413 K.

这说明最初的晶体生长是沿 a 轴和 b 轴方向, 随着晶化时间的延长, 晶体开始沿 c 轴方向生长, UZM-5 沸石的构型基本形成. 再延长晶化时间至 6 d, 样品发生转晶, 生成热力学上更加稳定的方钠石. 这可能是由于 $[4^5 5^4 6^4 8^1]wbc$ 笼转向形成了 $[4^6 6^8]sod$ 笼的缘故. 因此, UZM-5 沸石的晶化时间不宜过长.

图 3 是晶化不同时间得到样品的 FT-IR 谱. 可以看出, 晶化 2 d 后, 在 545 (五元环), 1 060 (T-O-T 反对称伸缩) 和 1 215 (五元环) cm^{-1} 处出现特征吸收峰, 并随着晶化时间的延长而逐渐增强. 晶化 4 d 天后, 在 569 cm^{-1} 出现双四元环吸收峰, 且随着时间的延长而增强, 但在晶化 6 d 后消失. 这与图 3 中晶化 4 d 后沿 c 轴方向晶体开始生长的现象类似, 表明 UZM-5 沸石的生长最初沿 a 轴和 b 轴方向进行, 然后沿 c 轴方向的双四元环形成, 构成 α 腔, 同时也说明易导向双四元环结构的 TMA^+ 对沿 c 轴方向生长的结构具有导向作用. 当晶化时间延长后双四元环逐渐消失, 生成方钠石. 1 485 cm^{-1} 处吸收峰对应于 TMA^+ 物种, 可见, 在 2 d 的晶化初期, TMA^+ 已经进入固相, 起到结构导向作用, 随着晶化时间的延长, 吸收峰增强.

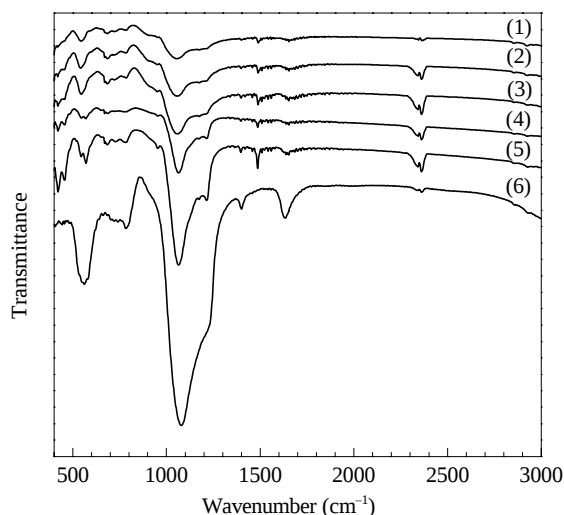


图 3 不同晶化时间得到的 UZM-5 沸石样品的 FT-IR 图

Fig. 3. FT-IR spectra of UZM-5 zeolite samples crystallized for different time. (1) 1 d; (2) 2 d; (3) 3 d; (4) 4 d; (5) 5 d; (6) 6 d. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMACl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:0.13:20$, 413 K.

2.2 模板剂用量的影响

考察了 TEAOH 用量对 UZM-5 沸石合成的影响. 图 4 是所得样品的 XRD 谱. 可以看出, 当

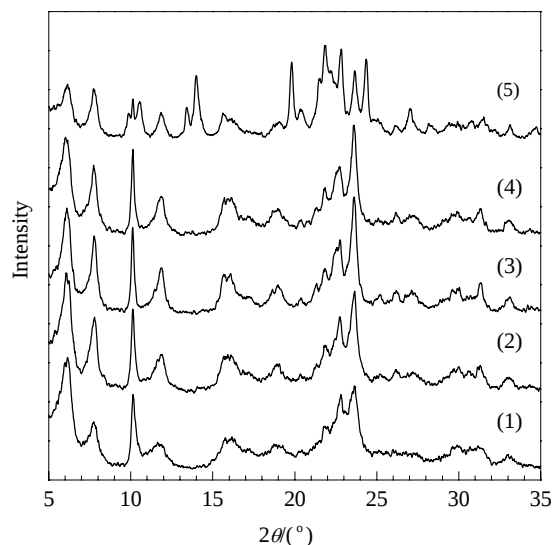


图 4 不同 $n(\text{TEAOH})/n(\text{SiO}_2)$ 得到的 UZM-5 沸石样品的 XRD 谱

Fig. 4. XRD patterns of UZM-5 zeolite samples crystallized at different $n(\text{TEAOH})/n(\text{SiO}_2)$ ratios. (1) 0.4; (2) 0.6; (3) 0.8; (4) 1.0; (5) 1.2. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TMACl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:0.13:20$, 413 K, 4 d.

$n(\text{TEAOH})/n(\text{SiO}_2) = 0.4 \sim 1.0$ 时均可得到 UZM-5 沸石. 当 $n(\text{TEAOH})/n(\text{SiO}_2) = 1.2$ 时产生大量杂晶. TEA^+ 具有较稳定的四面体结构, 且带正电荷, 有很好的定位作用, 加速单体硅和铝向聚合态转化^[10]. 同时, TEAOH 提供了碱性的溶液环境, 用量增加使得体系 pH 值升高, 导致形成更稳定的方钠石.

考察了 TMACl 用量对 UZM-5 沸石合成的影响. 图 5 是所得样品的 XRD 谱. 可以看出, 当 TMACl 用量较低时, 即已开始出现 UZM-5 沸石的一些特征峰; 当 $n(\text{TMACl})/n(\text{SiO}_2) = 0.13$ 时, 已形成结晶良好的 UZM-5 沸石; 继续增加 TMACl 用量反而形成了方钠石. 低 TMACl 用量时样品的 (002) 和 (110) 晶面衍射峰很弱, 这说明 TMA^+ 能有效促进沿 a 轴和 b 轴方向的 wbc 笼生长^[5]. 当 TMACl 用量继续增加时, TMA^+ 导向了 sod 笼的生成, 使得产物由 UZM-5 沸石转变为方钠石. 可见, TMACl 用量必须适中, TMA^+ 既能促进沿 a 轴和 b 轴方向生长, 又能导向沿 c 轴方向的双四元环形成, 构成 α 腔, 对合成的影响很大, 是重要的结构导向剂.

2.3 硅源的影响

考察了硅源对 UZM-5 沸石合成的影响. 图 6 是所得样品的 XRD 谱. 可以看出, 以硅溶胶、硅胶或硅酸为硅源均可得到结晶良好的 UZM-5 沸石.

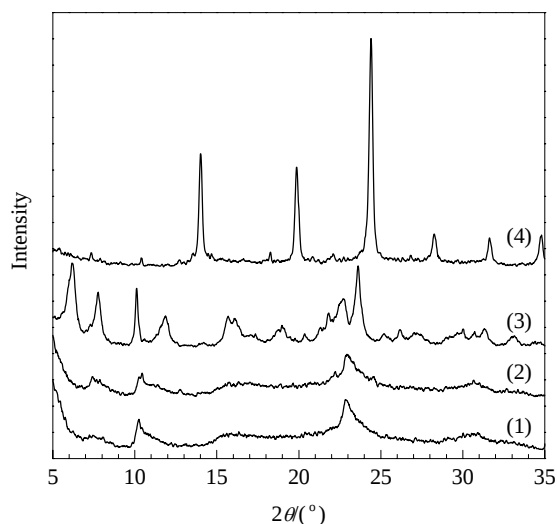


图 5 不同 $n(\text{TMAlCl})/n(\text{SiO}_2)$ 得到的 UZM-5 沸石样品的 XRD 谱

Fig. 5. XRD patterns of UZM-5 zeolite samples crystallized at different $n(\text{TMAlCl})/n(\text{SiO}_2)$ ratios. (1) 0.06; (2) 0.1; (3) 0.13; (4) 0.16. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:20$, 413 K, 4 d.

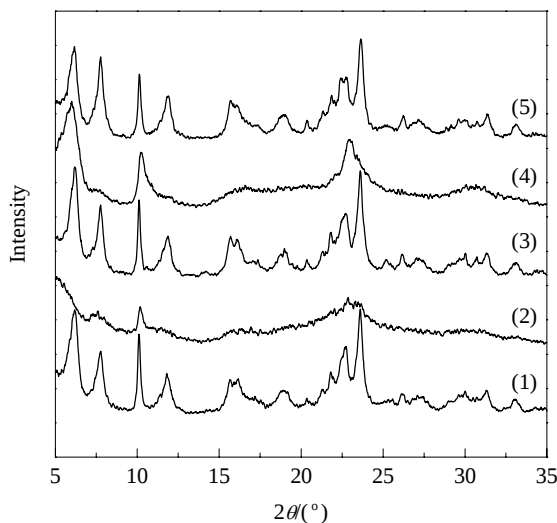


图 6 不同硅源得到的 UZM-5 沸石样品的 XRD 谱

Fig. 6. XRD patterns of UZM-5 zeolite samples crystallized with different silica sources. (1) Silica sol, 2 d; (2) Silica gel, 3 d; (3) Silica gel, 5 d; (4) Silicic acid, 3 d; (5) Silicic acid, 4 d. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMAlCl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:0.13:20$, 413 K.

其中以硅溶胶为硅源时晶化 2 d 即出现 UZM-5 沸石的特征峰; 以硅酸为硅源晶化 3 d 时才出现一些 UZM-5 沸石的特征峰, 晶化 4 d 时就能得到 UZM-5 沸石; 而以硅胶为硅源晶化 3 d 时特征峰很弱, 晶化 5 d 时才能得到 UZM-5 沸石. 可见, 晶化速率的顺

序为: 硅溶胶 > 硅酸 > 硅胶. 这主要取决于硅源的活性, 硅溶胶中的 SiO_2 溶解快, 晶化速度也快. 综上所述, 3 种硅源适宜的晶化时间分别是: 硅溶胶 2~3 d, 硅胶 5~6 d, 硅酸 4~5 d. 晶化时间过长后, 3 种硅源得到的样品中都含大量的方钠石杂晶.

2.4 金属钠离子的影响

以硅溶胶为硅源时, 样品中常有 UZM-9 杂晶生成^[11]; 而以硅胶和硅酸为硅源时则没有. 元素分析表明, 硅溶胶、硅胶和硅酸中的 Na^+ 含量分别为 3893.5, 9.02 和 0.85 $\mu\text{g}/\text{ml}$. 为了考察 Na^+ 对 UZM-5 沸石合成的影响, 在物料配比为 $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMAlCl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:0.13:20$, 413 K 晶化 4 d 的条件下, 用不同 Na^+ 含量进行了合成 (以 NaCl 为 Na^+ 源, 与模板剂 TMAlCl 一同加入) 实验. 图 7 是所得样品的 XRD 谱. 由图可见, Na^+ 含量很低时可得到结晶良好的 UZM-5 沸石. 随着 Na^+ 含量的增加, 在 $2\theta = 7.33^\circ$ 处出现了 UZM-9 沸石 (由 sod 笼和 $[4^{12}6^88^6]\text{lta}$ 笼组成) 的特征峰. 当 $n(\text{Na}^+)/n(\text{SiO}_2) = 0.04$ 时, 方钠石结晶度已远超过 UZM-5 和 UZM-9 的结晶度. Kim 等^[6]用含 0.09% Na^+ 的硅源合成 UZM-5 和 UZM-9 沸石, 对产物进行元素分析, 发现 UZM-9 沸石中含有 Na^+ , 而 UZM-5 沸石中没有. 因此, 他们认为 Na^+ 可能参与

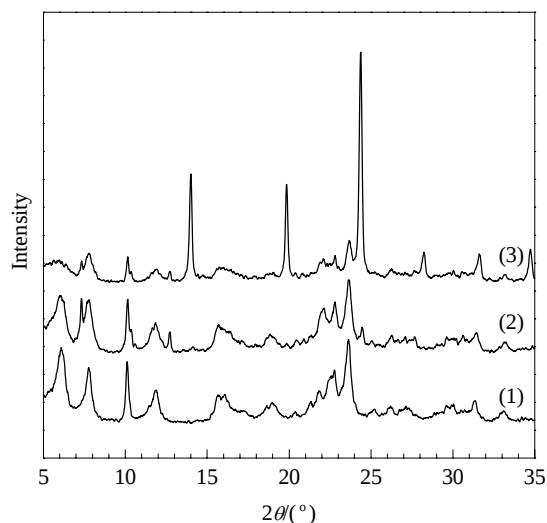


图 7 不同 $n(\text{Na}^+)/n(\text{SiO}_2)$ 比得到的 UZM-5 沸石样品的 XRD 谱

Fig. 7. XRD patterns of UZM-5 zeolite samples crystallized at different $n(\text{Na}^+)/n(\text{SiO}_2)$ ratios. (1) 0; (2) 0.02; (3) 0.04. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMAlCl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:0.13:20$, 413 K, 4 d.

了 UZM-9 沸石的成核和结晶, 本文得到相似的结果. 这可能是由于 Na^+ 的加入导向了 *sod* 笼的生成, 它作为额外的结构导向剂影响了沸石结构单元的生成, 从而影响了产物的相选择性.

为了进一步考察 Na^+ 对 UZM-5 沸石合成的影响, 在晶化温度和物料配比不变的情况下, 用 XRD 谱研究了 $n(\text{Na}^+)/n(\text{SiO}_2) = 0.02$ 时沸石的生长规律, 结果示于图 8. 可以看出, 合成初期得到的是 UZM-9 沸石; 随着晶化时间的延长, UZM-5 沸石的特征峰逐渐增强, 但 $2\theta = 7.33^\circ$ 处 UZM-9 沸石的特征峰一直存在. Fonseca 等^[12]研究了碱金属离子的静电作用与晶核形成速率及晶体生长速率的关系, 结果表明, 晶核形成速率和晶体生长速率随阳离子半径倒数的增加而增加, 即与碱金属离子的静电作用成正比. Na^+ 的半径很小, 它先导向 *sod* 笼的生成, 同时削弱了 TMA^+ 对晶体形成的促进作用, 特别是五元环的生长. 因此, UZM-9 沸石先形成. 随着晶化时间的延长, Na^+ 逐渐进入骨架, 在液相中的含量减少, TMA^+ 开始发挥结构导向作用, 从而形成了 UZM-5 沸石.

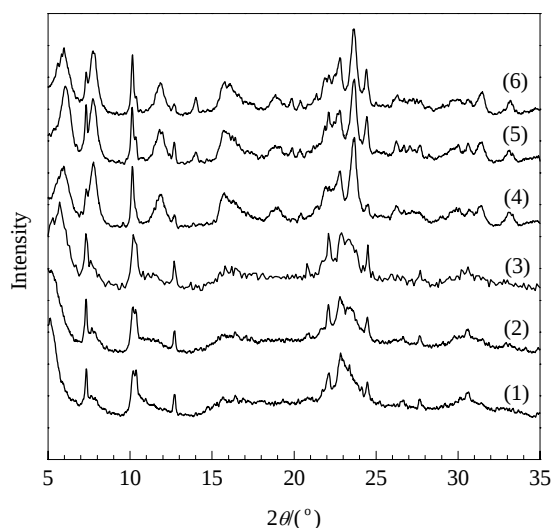


图 8 $n(\text{Na}^+)/n(\text{SiO}_2) = 0.02$ 时得到的 UZM-5 沸石样品的 XRD 谱

Fig. 8. XRD patterns of UZM-5 zeolite samples crystallized at $n(\text{Na}^+)/n(\text{SiO}_2) = 0.02$. (1) 24 h; (2) 30 h; (3) 36 h; (4) 42 h; (5) 48 h; (6) 96 h. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMACl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:0.13:20$, 413 K.

图 9 为 $n(\text{Na}^+)/n(\text{SiO}_2) = 0.02$ 时得到的 UZM-5 沸石样品的 DSC 谱. 可以看出, 晶化 12 h 时样品分别在 640 和 700 K 左右出现两个峰, 晶化 24 h 时峰

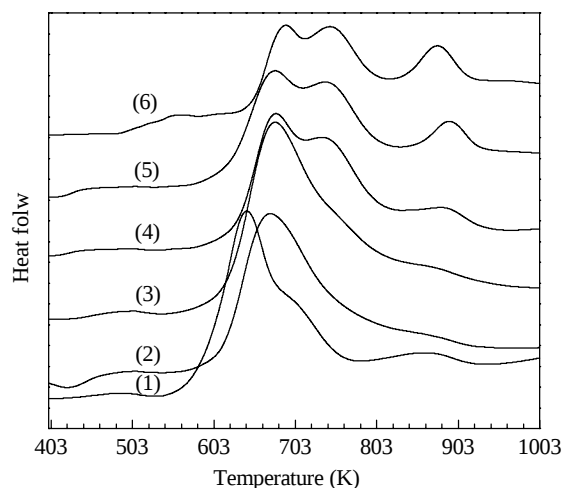


图 9 $n(\text{Na}^+)/n(\text{SiO}_2) = 0.02$ 时得到的 UZM-5 沸石样品的 DSC 谱

Fig. 9. DSC profiles of UZM-5 zeolite samples crystallized at $n(\text{Na}^+)/n(\text{SiO}_2) = 0.02$. (1) 12 h; (2) 24 h; (3) 36 h; (4) 42 h; (5) 48 h; (6) 96 h. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMACl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:0.25:1:0.13:20$, 413 K.

开始向高温偏移; 晶化 42 h 时分别在 680 和 740 K 左右出现两个宽峰并保持稳定. 晶化 12 h 的产物为 UZM-9 沸石, 640 和 700 K 左右的两个峰分别对应于孔道中模板剂及与骨架结合的模板剂的脱除. Na^+ 半径很小, 因此, 它在较低温度下先脱除. 随着液相中 Na^+ 的减少, TMA^+ 开始导向 UZM-5 沸石的生成, 此时形成的沸石结构不利于模板剂的脱除. 因此, 晶化 24 h 时脱除峰开始向高温偏移. 至 42 h 时 UZM-5 沸石形成, 823~923 K 则对应于邻近硅羟基缩合脱水. 模板剂脱除峰的失重率从 42 h 的 2.87% 增加到 48 h 的 3.57%, 之后保持稳定. 这与 42~96 h 产物的结晶度稳定相对应, 说明以硅溶胶为硅源时先形成 UZM-9 沸石, 再发生转晶形成 UZM-5 沸石并保持稳定.

2.5 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 比和 $\text{H}_2\text{O}/\text{SiO}_2$ 比的影响

考察了硅/铝比对 UZM-5 沸石合成的影响, 图 10 为所得样品的 XRD 谱. 可以看出, 当 $n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3) = 2$ 时, 产物呈无定形; 当 $n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3) = 3\sim 5$ 时都能生成 UZM-5 沸石. 随着硅/铝比的增加, 产物出现 β 沸石的特征峰. UZM-5 是一种低硅/铝比沸石, 投料硅/铝比对沸石的晶化速率、结晶度及纯度的影响很大. 硅/铝比增加到 6 后, TEA^+ 发挥结构导向作用, 产生了硅/铝比较高的 β 构型^[13].

考察了 H_2O 含量对 UZM-5 沸石合成的影响.

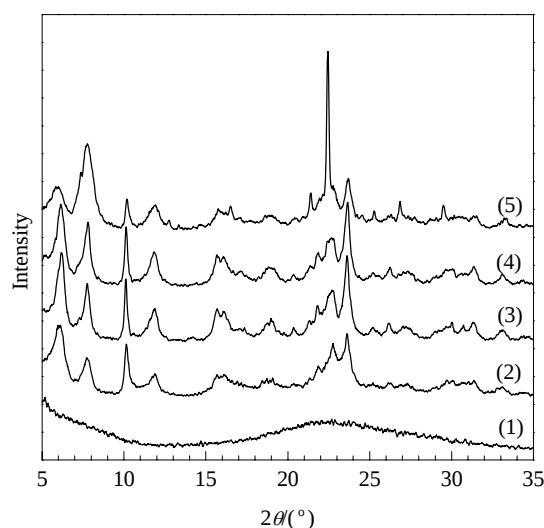


图 10 不同 $n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)$ 比得到的 UZM-5 沸石样品的 XRD 谱

Fig. 10. XRD patterns of UZM-5 zeolite samples crystallized at different $n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)$ ratios. (1) 2; (2) 3; (3) 4; (4) 5; (5) 6. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMACl}):n(\text{H}_2\text{O}) = 1:1:0.13:20$, 413 K, 4 d.

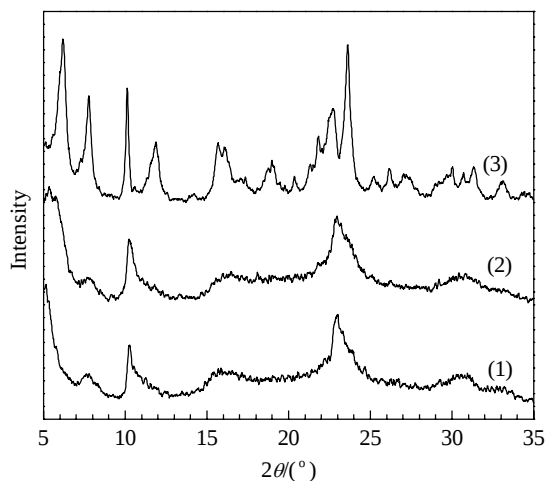


图 11 不同 $n(\text{H}_2\text{O})/n(\text{SiO}_2)$ 得到的 UZM-5 沸石样品的 XRD 谱

Fig. 11. XRD patterns of UZM-5 zeolite samples crystallized at different $n(\text{H}_2\text{O})/n(\text{SiO}_2)$ ratios. (1) 40; (2) 30; (3) 20. Crystallization conditions: $n(\text{SiO}_2):n(\text{Al}_2\text{O}_3):n(\text{TEAOH}):n(\text{TMACl}) = 1:0.25:1:0.13$, 413 K, 4 d.

图 11 为所得样品的 XRD 谱。由图可见, 当 $n(\text{H}_2\text{O})/n(\text{SiO}_2) = 20$ 时, 所得沸石结晶度最好; 随着 H_2O 用量的增加, 样品结晶度降低。在 UZM-5 沸石的水热合成中, H_2O 影响模板剂浓度以及晶化混合液的 pH 值和浓度, 从而间接影响沸石的结晶度。

pH 值偏低时, 沸石结晶度较低。这可能是由于低的 OH^- 浓度使得硅胶的溶解速度变慢, 从而抑制了沸石晶核的形成。

3 结论

以四乙基氢氧化铵-四甲基氯化铵为复合模板剂, 晶化温度为 403~423 K, 物料配比为 $\text{SiO}_2:(0.16\sim0.5)\text{Al}_2\text{O}_3:(0.4\sim1.0)\text{TEAOH}:(0.06\sim0.13)\text{TMACl}:20\text{H}_2\text{O}$, 采用水热法合成了结晶良好的 UZM-5 沸石。在一定条件下, 模板剂的种类和用量影响产物的相选择性, Na^+ 和 TMA^+ 在结构导向作用上存在竞争。以低 Na^+ 含量的硅酸或硅胶为硅源, 可避免 UZM-9 沸石的生成, 拓宽了 UZM-5 沸石合成的硅源范围。这对于降低合成成本以及工业化具有一定的意义。

参 考 文 献

- Blackwell C S, Broach R W, Gatter M G, Holmgren J S, Jan D Y, Lewis G J, Mezza B J, Mezza T M, Miller M A, Moscoso J G, Patton R L, Rohde L M, Schoonover M W, Sinkler W, Wilson B A, Wilson S T. *Angew Chem, Int Ed*, 2003, **42**: 1737
- Jan D Y, Lewis G J, Moscoso J G, Miller M A. US 6 388 157. 2002
- Moscoso J G, Lewis G J, Miller M A, Jan D Y, Patton R L, Rohde L M. US 6 613 302. 2003
- Jan D Y, Lewis G J, Moscoso J G, Miller M A, Chen Q J. US 6 388 159. 2002
- Jan D Y, Lewis G J, Mezza T M, Moscoso J G, Patton R L, Koljack M P, Tota P V. *Stud Surf Sci Catal*, 2004, **154**: 1332
- Kim S H, Park M B, Min H K, Hong S B. *Microporous Mesoporous Mater*, 2009, **123**: 160
- 贾银娟, 钱斌, 高焕新. 分子催化 (Jia Y J, Qian B, Gao H X. *J Mol Catal (China)*), 2007, **21**(suppl): 153
- 钱斌, 贾银娟, 高焕新, 谢在库. 化学反应工程与工艺 (Qian B, Jia Y J, Gao H X, Xie Z K. *Chem React Eng Technol (China)*), 2008, **24**: 353
- 徐如人, 庞文琴, 于吉红, 霍启升, 陈接胜. 沸石与多孔材料化学. 北京: 科学出版社 (Xu R R, Pang W Q, Yu J H, Huo Q Sh, Chen J Sh. *Chemistry of Zeolites and Porous Materials*. Beijing: Sci Press), 2005. 382
- 谢在库, 陈庆龄, 张成芳, 张惠宁, 陈波. 催化学报 (Xie Z K, Chen Q L, Zhang Ch F, Zhang H N, Chen B. *Chin J Catal*), 2000, **21**: 85
- Moscoso J G, Lewis G J, Gisselquist J L, Miller M A, Rohde L M. US 6 713 041. 2004
- Fonseca A, Nagy J B, Asswad J E H A, Mostowicz R, Testa F, Crea F. *Zeolites*, 1995, **15**: 259
- 谢在库, 陈庆龄, 张成芳, 陈波, 陆丽元. 化学物理学报 (Xie Z K, Chen Q L, Zhang Ch F, Chen B, Lu L Y. *Chin J Chem Phys*), 2000, **13**: 89