

Estudo da zeólita ZSM-5 desaluminizada por reação de estado sólido

Caroline M. da Silva (IC)^{*}, Sheila M. Franco (IC), Júlia M. Müller (PG), Andréia A. Costa (PQ), Grace F. Ghesti (PQ), Julio L. de Macedo (PQ), José A. Dias (PQ), Sílvia C.L. Dias (PQ).

Universidade de Brasília, Campus Universitário Darcy Ribeiro, Instituto de Química, Laboratório de Catálise, Brasília, Brasil. CEP 70904-970, (61) 3107-3847, *E-mail: unbcaroline@gmail.com

Palavras Chave: Zeólita ZSM-5, Desaluminização, Reação em estado sólido

Introdução

As zeólitas apresentam características atrativas para as mais variadas aplicações. A ZSM-5, é uma delas, apresenta alta seletividade em determinadas reações catalíticas e alto grau de estabilidade térmica e ácida. Mas essa seletividade pode impedir algumas moléculas de entrarem em seus poros e por isso técnicas de modificação estruturais são muito estudadas.¹ A desaluminização é um método de pós-síntese que permite modificar as zeólitas, melhorando a atividade catalítica, a capacidade adsortiva e a seletividade quando comparadas com aquelas sem tratamento.² No presente trabalho a zeólita ZSM-5 amoniacal ($\text{NH}_4\text{ZSM-5}$) da Zeolyst foi desaluminizada com $(\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6$ a 5 e 10% em estado sólido à 80 °C/2h em forno à vácuo, lavada com água a 80 °C e caracterizada.

Resultados e Discussão

Os resultados de área superficial (S_{BET}) e de microporo (S_{micro}) mostram que ocorreu um aumento de mesoporos e uma diminuição de microporos (Tabela 1). Estes dados, juntamente com os de cristalinidade (C) evidenciam a retirada de alumínio da rede e a presença dos três picos característicos ($2\theta = 22.5\text{-}25.0^\circ$) indicam a eficiência do método.

Tabela 1. Propriedades estruturais da ZSM-5 calcinada (Cal) e desaluminizada (D5% e D10%).

ZSM-5	S_{micro}	S_{BET} (m ² /g)	C (%)
Cal	280,9	328,1 ± 8,4	100
D5%	241,9	391,3 ± 4,6	97
D10%	226,4	386,4 ± 4,5	88

A razão Si/Al (Tabela 2) e a área superficial relativa aos mesoporos aumentaram e permaneceram constantes com a desaluminização já que átomos de Al foram retirados para dar lugar aos de Si. Já a quantidade de sítios ácidos diminuiu.

Tabela 2. Caracterização da acidez das amostras.

ZSM-5	Si/Al	Brønsted/ Lewis	Sítios ácidos (mmol/g)
Cal	25,8	2,00	5,05
D5%	26,7	1,89	0,25
D10%	26,7	2,68	0,25

O processo de desaluminização inicialmente causa uma diminuição de sítios de Brønsted e aumento dos sítios de Lewis (Figura 1). Com D10% é possível que os sítios de Brønsted remanescentes tornaram-se mais acessíveis à ligação com molécula-prova (piridina).

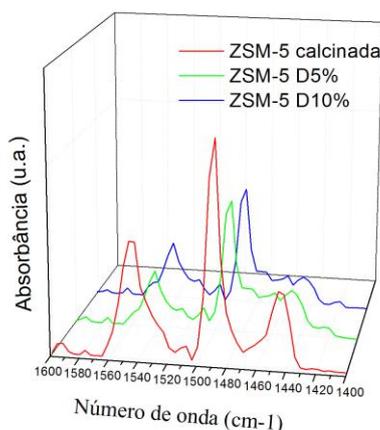


Figura 1. Infravermelho de amostras com py adsorvida.

Estudos de adsorção/dessorção de N_2 também evidenciaram um aumento da distribuição de mesoporos, de 2 a 50 nm, na estrutura das zeólitas desaluminizadas quando comparadas à ZSM-5 pura.

Conclusões

A desaluminização em estado sólido utilizando o complexo $(\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6$ em condições brandas, mostrou manter a cristalinidade da zeólita ZSM-5, mesmo aumentando consideravelmente sua área superficial. As amostras serão testadas em processos de adsorção e calorimetria com outras moléculas-prova para um estudo de força ácida e capacidade adsortiva.

Agradecimentos

DPP-IQ-UNB, CNPq, CAPES, FINATEC, FAPDF, FINEP-CTInfra e Petrobras.

¹Guisnet M.; Gilson, J. Zeolites for Cleaner Technologies, Imperial College Press, Catalytic Science Series, V.3 (2002) 1-23.

²Pál-Borbély, G. e Beyer, H. K. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2003**, *5*, 2145.