

Abstrakt

Předložená disertační práce se zabývá syntézou nových typů zeolitů, jejich charakterizací a možným využitím v katalýze. Disertace byla zaměřena především na zeolity s dvourozměrnou strukturou. Práce byla vypracována na oddělení Syntézy a katalýzy na Ústavu fyzikální chemie J. Heyrovského AV ČR.

Germanokřemičitan UTL (s molárním poměrem Si/Ge 4.0–6.5) podléhá unikátním strukturním změnám, ke kterým dochází v neutrálním nebo mírně kyselém prostředí a které způsobují přeměnu jeho třírozměrné krystalické struktury na dvourozměrnou. Vzniklý vrstevnatý materiál byl nazván IPC-1P. Přeměna z třírozměrného na dvourozměrný zeolit, tzv. top-down syntéza, je umožněna díky přítomnosti stavebních jednotek tzv. double-four-ring (D4R), které tvoří pilíře mezi pevnými vrstvami daného zeolitu. D4R jednotky jsou přednostně tvořeny atomy germania a kyslíku a tvoří tak ideální cíl pro jejich selektivní odstranění. Mezivrstevný prostor u lamelárního IPC-1P bylo možno modifikovat interkalací činidla s dlouhým organickým řetězcem. Výsledný materiál byl označen IPC-1SW. Následně byly v meziprostoru vytvořeny pilíře z amorfního oxidu křemičitého, aby vrstvy zůstaly natrvalo oddáleny (až do vzdálenosti 3.3 nm). Materiál byl pojmenován jako IPC-1PI. U všech členů IPC-1 skupiny bylo potvrzeno zachování vrstev a jejich původní UTL struktura s použitím elektronové difrakce a HRTEM.

Vrstvy v IPC-1P bylo možné znovu spojit a tím připravit nové zeolitové struktury. V závislosti na délce vazby mezi vrstvami byly připraveny dva typy nových zeolitů, IPC-2 a IPC-4. Původní D4R jednotky v UTL byly nahrazeny novými single-four-ring (S4R) jednotkami u zeolitu IPC-2 nebo jednoduchými Si-O-Si vazbami u zeolitu IPC-4. Tyto tři zeolity jsou velmi blízké materiály, jelikož mají stejnou strukturu vrstev a liší se pouze v jejich propojení. Velikost kanálových systémů klesá s rozměrem spojek mezi vrstvami: UTL (14-12-četné kanály) > IPC-2 (12-10-četné kanály) > IPC-4 (10-8-četné kanály). IPC-2 a IPC-4 byly uznány Mezinárodní komisí IZA jako nové zeolity se zkratkou OKO (pro COK-14, který je isostrukturní s IPC-2) a PCR (Prague Chemistry four).

Nové typy materiálů, IPC-1PI, IPC-2 a IPC-4, byly připraveny také ve formě s hliníkem a byly testovány v alkylaci toluenu s isopropyl alkoholem a pilířovitý Al-IPC-1PI v reakci styrenu s fenolem/*tert*-butylfenolem.

Nový přístup pro přípravu zeolitů byl nazván ADoR, tzn. nejdříve je třeba zeolit připravit (Assembly), poté hydrolýzou převést na vrstvy (Disassembly), uspořádat vrstvy (organization) a nakonec kalcinací znovu spojit (Reassembly). Mechanismus ADoR byl detailně studován s použitím různých podmínek pro hydrolýzu.

Metoda ADoR byla úspěšně aplikována i na další germanokřemičitan, zeolit IWW. Jeho hydrolýzou byl připraven vrstevnatý materiál IPC-5P. Ten byl zpětně převeden do třírozměrné struktury pomocí interkalace silylačního činidla. Na rozdíl od zeolitu UTL a jeho IPC-1P u materiálu IPC-5P byla zjištěna silná tendence formovat původní IWW strukturu. Tato jedinečná 3D-2D-3D přeměna zeolitové struktury je ojedinělým případem, který do současné doby nebyl popsán.