

1,8-辛二胺作为结构导向剂合成 ZSM-11 分子筛

徐霆^{1,2}, 杜立方¹, 岑诗雨¹, 赵茜怡^{1,2}

(1.河南师范大学 化学化工学院,河南 新乡 453007;

2.河南省硼化学与先进能源材料重点实验室,河南 新乡 453007)

摘要: ZSM-11 是重要的固体酸催化剂,在石油化工领域应用广泛,因此,ZSM-11 的高效合成备受关注.采用 1,8-辛二胺(DAOT)作为结构导向剂,用水热法在较宽范围内成功地合成了不含 ZSM-5 杂晶的 ZSM-11 分子筛.研究了水平转速、晶化温度、晶化时间以及硅铝比对 ZSM-11 分子筛制备的影响.在不同的合成条件下,得到了不同的晶体尺寸、形貌以及不同结晶度的 ZSM-11 分子筛.样品晶粒通过 X 射线衍射(XRD)和扫描电子显微镜(FESEM)进行表征.研究拓展了 ZSM-11 的高效合成方法,得到了 ZSM-11 分子筛的最佳合成条件为水平转速 50 r/min,160 °C 晶化 48 h.

关键词: ZSM-11 分子筛;1,8-辛二胺;动态晶化;结晶度;合成条件

中图分类号: O643

文献标志码: A

ZSM-11 和 ZSM-5 是众所周知的固体酸催化剂,由于它们的特殊结构,热稳定性和酸性,被广泛用于石油化工产品的生产^[1-4].ZSM-11 与 ZSM-5 相比,有更大的孔体积和更低的弯曲度,更有利于大分子的扩散和生成,因此,广泛应用于催化和吸附领域^[5].在一些反应中,ZSM-11 相比于 ZSM-5 具有更优异的催化性能,如链烷烃加氢异构化,甘油与丙烯醛脱水,重油催化裂解,甲醇制低碳烯烃,苯的烷基化等^[6-8].因此,ZSM-11 催化剂的高效制备,得到了广泛关注.

ZSM-11 是一种 MEL(Mobil Eleven)型高硅分子筛,其骨架结构与 MFI(Mobil Five)型分子筛相似,两者同属于五元环结构家族^[9-12].ZSM-11 分子筛与 ZSM-5 分子筛有着相似的骨架密度和孔径尺寸.ZSM-5 有交叉直孔道和正弦孔道,孔径大小为 0.51 nm×0.55 nm↔0.53 nm×0.56 nm,而 ZSM-11 只有直孔道,孔径大小为 0.53 nm×0.54 nm↔0.53 nm×0.54 nm^[13-16].二者结构相似且 ZSM-5 更稳定,因此,在 ZSM-11 的合成过程中很容易出现 ZSM-5 杂晶.

四丁基溴化铵(TBABr)是制备 ZSM-11 最常用的结构导向剂.由于 ZSM-11 和 ZSM-5 两种分子筛有相似的拓扑结构,使用该模板剂很难制备出不含 ZSM-5 相的纯 ZSM-11 分子筛.比如于庆君等人^[17]使用四丁基溴化铵所合成的样品中,当硅铝比超过 100 时,在 $2\theta=45^\circ$ 处出现类似 MFI 结构的双峰,说明材料中 MFI 结构的出现;付文华等人^[18]使用四丁基溴化铵作为模板剂合成 ZSM-11/ZSM-5 共晶分子筛;Conte 等人^[19]使用四丁基溴化铵合成了 ZSM-5/ZSM-11 共晶分子筛.

目前,已有报道指出通过使用二胺类模板剂成功合成 ZSM-5 和 ZSM-11 分子筛.如 Chen 等人^[20]使用静态晶化法,以乙二胺(EDA)和 1,6-己二胺(HDA)以及 1,8-辛二胺(DAOT)和 1,10-癸二胺(DADC)作为模板剂分别晶化 5 d 和 10 d 得到了 ZSM-5 和 ZSM-11 分子筛,但该方法耗时较长且制备的分子筛结晶度较低.

本文采用 1,8-辛二胺作为结构导向剂通过动态晶化法在较短时间内成功合成了高结晶度纯的 ZSM-11 分子筛.研究了水平转速、晶化温度、晶化时间以及硅铝比对产物的影响,并对产物的结晶度,晶相,晶粒尺寸

收稿日期:2018-09-27;修回日期:2018-10-23.

基金项目:国家自然科学基金(5201039120117)

作者简介(通信作者):徐霆(1985-),男,河南新乡人,河南师范大学副教授,研究方向为能源催化研究,E-mail: xuting@htu.edu.cn.

和形貌进行了观察和表征,得到了 ZSM-11 最优的合成条件,拓展了高效合成 ZSM-11 的方法.

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

ZSM-11 的合成分别以硅溶胶[40%SiO₂(质量分数,下同),60%H₂O,青岛海洋化工有限公司],硫酸铝[Al₂(SO₄)₃·18H₂O,99.0%,上海麦克林生化科技有限公司]和氢氧化钾(85.0%,天津市大茂化学试剂厂)作为硅源,铝源和碱源.1,8-辛二胺(DAOT)作为结构导向剂(99.0%,阿拉丁上海试剂有限公司).

XRD 采用德国 Bruker 公司 D8 ADVANCE 型仪器(Cu K α , $\lambda=0.150\ 64\ \text{nm}$); SEM 采用日本电子公司的 JSM-6390LV 型扫描电子显微镜.

1.2 材料的制备

制备 ZSM-11 分子筛的反应混合物的摩尔组成为 $n(\text{H}_2\text{O}) : n(\text{Al}_2\text{O}_3) : n(\text{SiO}_2) : n(\text{KOH}) : n(\text{DAOT}) = 3\ 600 : 1.0 : 100 : 28 : 27$.首先,将 100 mL 去离子水加入到烧杯中,在搅拌条件下加入 1.3 g 的 Al₂(SO₄)₃·18H₂O;随后,加入 30 g 的硅溶胶形成凝胶乳液;待溶液变澄清后加入 4.5 g 的 KOH;最后,加入 7.8 g 的 DAOT 并保持剧烈搅拌直至形成均匀凝胶乳液.在室温下搅拌 3 h 后,将凝胶乳液转移至含聚四氟乙烯内衬的不锈钢反应釜中,在自生压力下,水平转速为 0~50 r/min,温度为 120~200 °C 的烘箱中晶化 12~48 h,待自然冷却至室温后,将所得样品抽滤洗涤至 pH=7,100 °C 干燥过夜,550 °C 焙烧 5 h 以去除模板剂,即得 ZSM-11 分子筛.合成的具体条件如表 1 所示.

表 1 ZSM-11 样品的合成条件

Tab.1 Synthetic conditions of ZSM-11 samples

Sample	T/°C	t/h	$n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)^a$	Speed/(r·min ⁻¹)
T1	160	12	50	0
T2	160	48	50	0
T3	160	48	50	10
T4	140	48	50	30
T5	180	48	50	50
T6	160	12	50	50
T7	160	24	50	50
T8	120	48	50	50
T9	140	48	50	50
T10	180	48	50	50
T11	200	48	50	50
T12	160	48	100	50
T13	160	48	150	50

注:^a $n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)$ calculated in the initial solution.

2 结果与讨论

为了得到最优的合成条件,首先考察了在静态条件下,晶化 12 h 和 48 h 所得到样品的晶相.如图 1 所示,在 $2\theta=7.92^\circ$ 、 8.78° 、 23.14° 、 23.98° 和 45° 处为 ZSM-11 的特征衍射峰.结果表明,晶化 12 h 后,只有极少量的 ZSM-11 分子筛生成,产物几乎为非晶相.当结晶时间增加至 48 h 时,ZSM-11 的特征峰强度显著增加,而无定形峰消失,说明该条件下生成了结晶度较好的 ZSM-11.

为了进一步优化合成条件,对水平转速、晶化温度、晶化时间以及硅铝比的影响进行了详细地探究.

2.1 水平转速的影响

为了研究水平转速对 ZSM-11 分子筛制备的影响,采用不同的转速,使水热合成在水平旋转中进行.图 2 是 160 °C 晶化 48 h,水平转速分别为 0、10、30 和 50 r/min 时,所制备样品的 XRD 图.如图 2 所示,在不同的水平转速下均得到了纯的 ZSM-11 分子筛.在转速为 0~30 r/min 时,样品的结晶度相差无几;当水平转速升至 50 r/min 时,样品的结晶度有明显的提高.这可能是由于凝胶溶解速率增加,加快了晶核的形成过程和 ZSM-11 晶体的生长过程.因此,水平转速对样品的结晶度产生一定的影响但并不是决定性因素.图 3 为不同水平转速下所制备的 ZSM-11 样品的 SEM 图,当水平转速为 0 r/min 时,样品为不规则层状晶体团聚体,粒径约为 4~5 μm ;当提高转速至 10 r/min 和 30 r/min 时,ZSM-11 晶粒形貌发生明显改变,均为均匀的小球

形颗粒,粒径分别约为 $1\ \mu\text{m}$ 和 $2\sim 3\ \mu\text{m}$.当转速继续增加至 $50\ \text{r}/\text{min}$ 时,球形颗粒聚集在一起形成团聚体,粒径约为 $3\sim 4\ \mu\text{m}$.结果表明,水平转速影响了 ZSM-11 晶粒尺寸和形貌.在动态条件下,随着水平转速的增加,ZSM-11 的粒径增加,且逐渐形成球形团聚体.

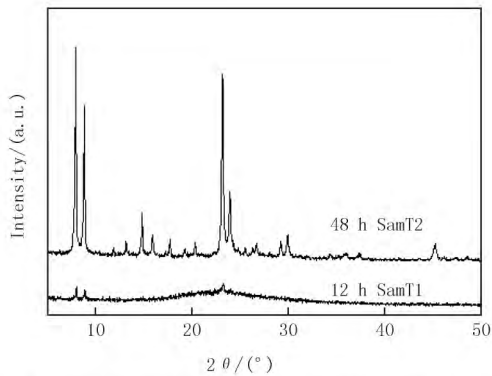


图 1 160 °C 动态晶化不同时间合成的 ZSM-11 [$n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)=50$] 的 XRD 图
Fig.1 XRD patterns of ZSM-11 [$n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)=50$] synthesized at 160 °C via static autoclave with different synthesis time

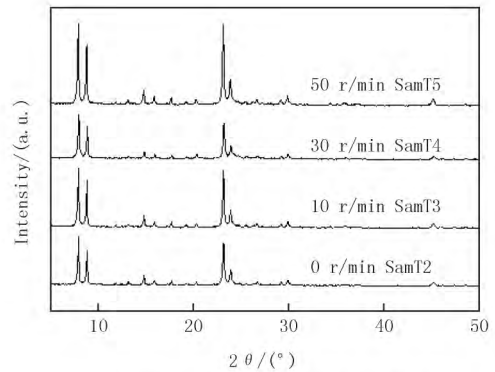


图 2 不同转速合成的 ZSM-11 的 XRD 图
Fig.2 XRD patterns of ZSM-11 zeolite synthesized at different horizontal rotation speeds

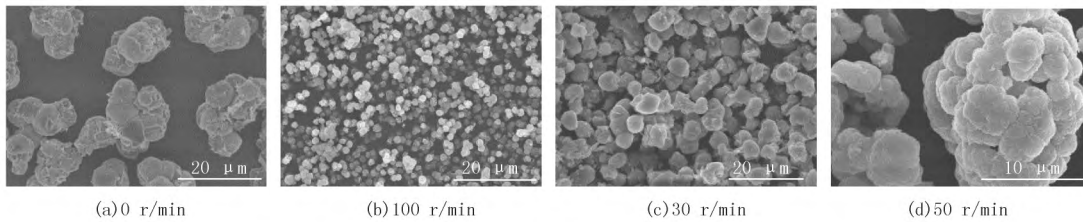


图 3 不同转速下, 160 °C 晶化 48 h 合成的 ZSM-11 [$n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)=50$] 的 SEM 图

Fig.3 SEM patterns of ZSM-11 zeolite [$n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)=50$] synthesized at 160 °C for 48 h at different horizontal rotation speeds

2.2 晶化温度的影响

为了研究晶化温度对 ZSM-11 分子筛合成的影响,将水平转速固定为 $50\ \text{r}/\text{min}$,调变晶化温度为 $120\sim 200\ ^\circ\text{C}$.图 4 显示了不同晶化温度下合成的 ZSM-11 的 XRD 谱图.从图中可以看出,晶化温度对 ZSM-11 的合成具有显著的影响.当晶化温度为 $120\ ^\circ\text{C}$ 时,产物为非晶相,当温度升至 $140\ ^\circ\text{C}$,生成了纯的 ZSM-11 分子筛,随温度增加至 $160\ ^\circ\text{C}$,样品结晶度大大提高,然而当温度继续增加时,样品的结晶度开始下降,且在温度为 $200\ ^\circ\text{C}$ 时,在 $2\theta = 21.8^\circ$ 和 45.2° 处以及 26.6° 处,分别出现了

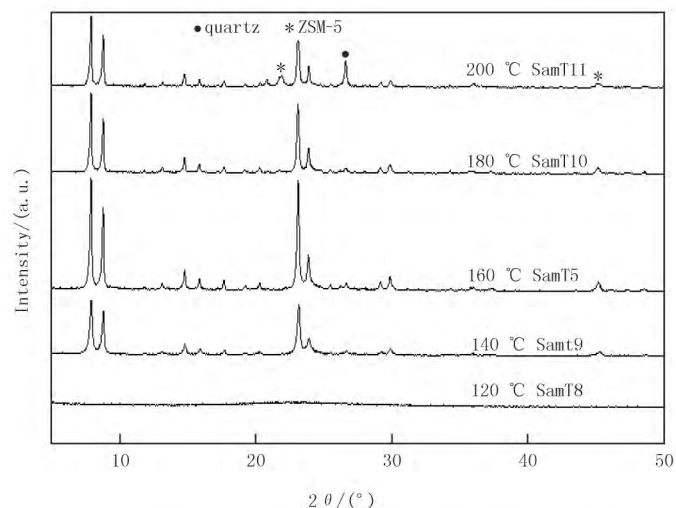


图 4 晶化时间为 48 h, 不同晶化温度下合成的 ZSM-11 的 XRD 图
Fig.4 XRD patterns of ZSM-11 synthesized for 48 h and different crystallization temperatures

ZSM-5 和石英相的特征衍射峰.结果表明,温度是影响样品结晶度的关键因素,在较低的晶化温度下无法生成 ZSM-11,温度过高样品结晶度会降低且会产生少量 ZSM-5 杂晶,因此, $160\ ^\circ\text{C}$ 是制备 ZSM-11 的最佳晶化温度,且结晶度较高.而 Huang 等人通过两步晶化法(先是 $90\ ^\circ\text{C}$ 晶化 24 h,再 $170\ ^\circ\text{C}$ 晶化 8 h)制备的

ZSM-11 结晶度较低^[3].

从图 5 的 SEM 图中,可以看出,随着温度从 140 °C 增加至 160 °C,硅铝比 50 的 ZSM-11 分子筛的粒径从 1 μm 增加至 3 μm ,都呈均匀的球形团聚体.而温度继续增加至 180 °C 时,样品的形貌和大小发生明显改变,从图 5(c)中可以看出,样品大部分为片状晶体,在片状晶体的表面和缝隙间又夹杂一部分的针状晶体.结果表明,温度对 ZSM-11 晶粒的形貌和尺寸起着重要的作用.

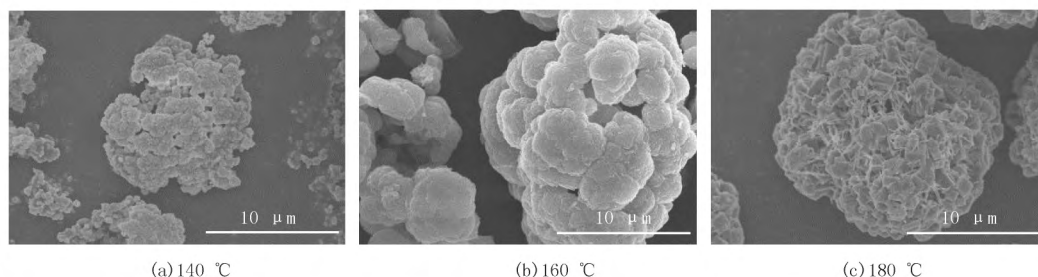


图 5 晶化 48 h, 不同晶化温度下合成的 ZSM-11 的 SEM 图

Fig.5 SEM patterns of ZSM-11 synthesized for 48 h at different crystallization temperatures

2.3 晶化时间的影响

图 6 是水平转速为 50 r/min, 晶化温度为 160 °C, 晶化时间分别为 12 h、24 h 和 48 h 所制备的样品的 XRD 图.在不同晶化时间下,所有样品都显示了 ZSM-11 分子筛的特征峰.而 Dey 等人使用四丁基氢氧化铵作为模板剂制备 ZSM-11 的过程,晶化时间过长,长达 12 d^[15].

在晶化时间为 12 h 时,样品的结晶度最低,当晶化时间增加至 48 h 时,样品的结晶度最高.结果表明,晶化时间对样品的结晶度有一定的影响,且随晶化时间的增加,样品的结晶度也增加.图 7 分别为 3 种样品的 SEM 图,从图中可以看出,样品均为球形团聚体,结果表明,晶化时间对样品形貌影响不大.

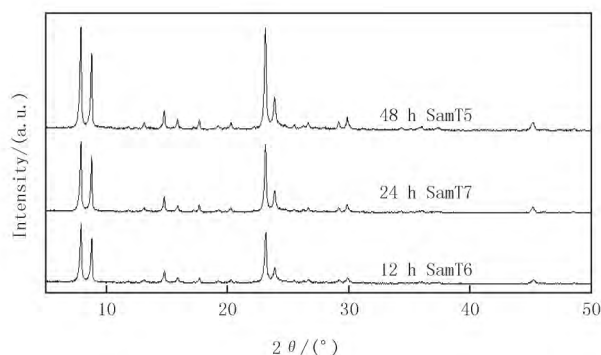


图 6 温度为 160 °C, 动态晶化不同时间合成的 ZSM-11 的 XRD 图

Fig.6 XRD patterns of ZSM-11 zeolite synthesized at 160 °C via rotating autoclave with different synthesis time

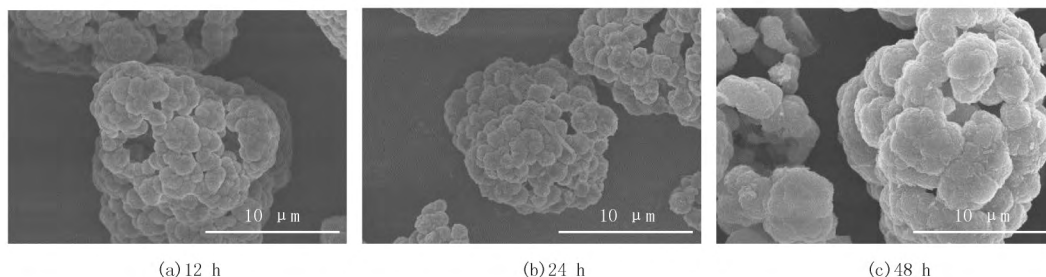


图 7 温度为 160 °C, 动态晶化不同时间合成的 ZSM-11 的 SEM 图

Fig.7 SEM patterns of ZSM-11 zeolite synthesized at 160 °C via rotating autoclave with different synthesis time

2.4 硅铝比的影响

考察了硅铝比对 ZSM-11 分子筛的晶相, 结晶度, 晶体尺寸和形貌的影响. 分别固定水平转速为 50 r/min, 晶化温度为 160 °C, 晶化时间为 48 h, 调变硅铝比分别为 50、100 和 150.

从图 8 中可以看出,当硅铝比为 50、100 和 150 时,均可得到纯的 ZSM-11.且样品的结晶度随硅铝比的增加而增加,说明提高硅铝比有利于提升 ZSM-11 分子筛的结晶度.

图 9 为不同硅铝比下所制备的 ZSM-11 分子筛的 SEM 图.从图中可以看出,3 种样品的形貌不一致.其中硅铝比为 50 的 ZSM-11 分子筛为球形团聚体,平均粒径约为 $3 \mu\text{m}$,硅铝比为 100 的 ZSM-11 分子筛为长方体聚集而成的花簇状,平均粒径约为 $1 \mu\text{m}$,硅铝比为 150 时所得到的 ZSM-11 分子筛为纳米晶体,粒径约为 500 nm ,分子筛大部分为长方体晶体,晶体表面还包含一部分球形晶体.结果表明,硅铝比对晶粒的形貌和尺寸产生了影响,且随硅铝比增加,样品粒径逐渐变小.这可能是由于晶核的数量减少,从而样品的粒径随硅铝比的增加逐渐减小.

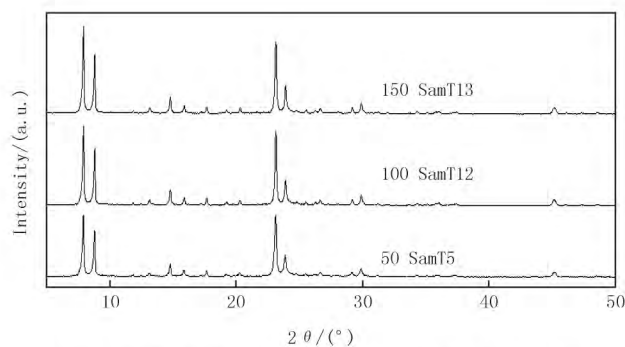


图 8 温度为 $160 \text{ }^{\circ}\text{C}$, 晶化 48 h 合成不同硅铝比的 ZSM-11 的 XRD 图
Fig. 8 XRD patterns of ZSM-11 synthesized at $160 \text{ }^{\circ}\text{C}$ for 48 h with different $n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)$ ratio in the initial synthesis solution

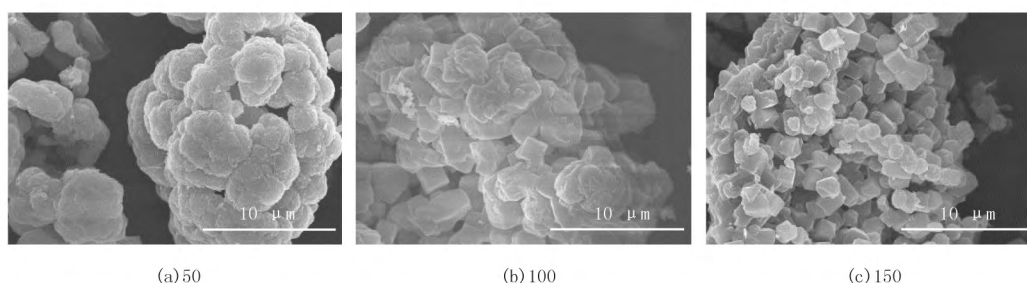


图 9 温度为 $160 \text{ }^{\circ}\text{C}$, 晶化 48 h 合成不同硅铝比的 ZSM-11 的 SEM 图
Fig. 9 SEM patterns of ZSM-11 synthesized at $160 \text{ }^{\circ}\text{C}$ for 48 h and different $n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)$ ratio in the initial synthesis solution

2.5 ZSM-11 分子筛的理化性质

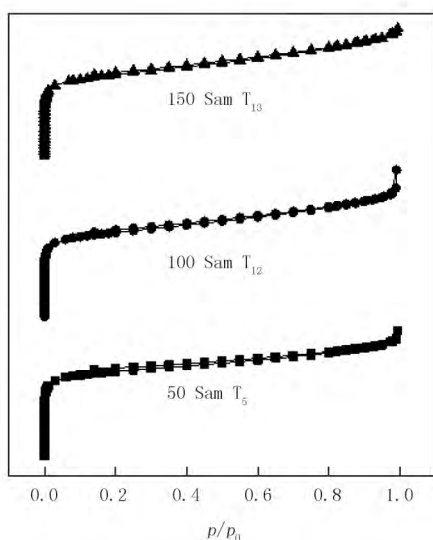
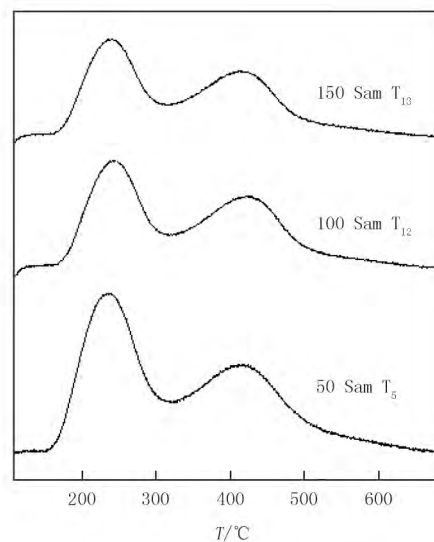
为了更好地研究 ZSM-11 分子筛,选择 2.4 部分中具有不同硅铝比的样品对其酸性及比表面积(BET)进行表征.不同硅铝比的 ZSM-11 分子筛 N_2 吸附解吸等温线图,如图 10 所示,所有样品的 N_2 吸附-解吸等温线是 I 型,用 BET 法对比表面积进行评估,且微孔体积为 $0.11 \sim 0.12 \text{ cm}^3/\text{g}$ (如表 2),在所有样品中高的微孔体积和高的相对结晶度是一致的.

表 2 H-ZSM-11 的结构和物化性质

Tab.2 Textural and physiochemical data of HZSM-11

Sample	Surface area/ $(\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1})$		Pore volume/ $(\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1})$	
	S_{ext}	S_{BET}	V_{total}	V_{micro}
Sam T5	89	362	0.21	0.12
Sam T12	110	362	0.22	0.11
Sam T13	128	350	0.22	0.09

采用 NH_3 -TPD 对不同样品的酸性进行研究,如图 11,不同样品的所有曲线在测试温度范围内都显示了两个解吸峰.特别地,H-ZSM-11 样品的解吸峰温在 $230 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 对应的是 NH_3 解吸的弱酸, $420 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 对应的是 NH_3 解吸的强酸,计算出的所有样品的总酸量相似,随硅铝比增加,总酸量略有降低,分别为 $0.634, 0.515, 0.494$,总体上酸量差别不大.

图10 不同样品的 N_2 吸附-解吸等温线Fig10 N_2 adsorption-desorption isotherms of different samples图11 不同样品的 NH_3 -TPD曲线Fig11 NH_3 -TPD profiles of different samples

3 结论

以1,8-辛二胺作为结构导向剂,在较宽的范围内,成功制备出不含ZSM-5晶相的ZSM-11分子筛,拓展了ZSM-11分子筛的合成方法.考察了水平转速、晶化温度、晶化时间以及硅铝比的影响.实验结果表明,以上合成条件都对ZSM-11分子筛的制备产生了一定影响,在不同的水平转速、晶化温度、晶化时间以及硅铝比条件下,可制备出不同结晶度、形貌和晶体尺寸的ZSM-11分子筛.本研究得到的最优合成条件为水平旋转速度50 r/min,160 °C温度下结晶48 h.此外,硅铝比对样品的形成也产生一定影响,随硅铝比增加,样品结晶度增加.

参 考 文 献

- [1] Zhang L, Liu H J, Li X J, et al. Differences between ZSM-5 and ZSM-11 zeolite catalysts in 1-hexene aromatization and isomerization[J]. Fuel Process Technol, 2010, 91(5): 449-455.
- [2] Liu H, Liu S L, Xie S J, et al. Effect of Desilication on the Performance of Hierarchical ZSM-11 Catalysts for Alkylation of Benzene with Dimethyl[J]. Ether Catal Lett, 2015, 145(11): 1972-1983.
- [3] Huang H W, Meng X J, Chen C, et al. Effect of Phosphorus Addition on the Performance of Hierarchical ZSM-11 Catalysts in Methanol to Propene Reaction[J]. Catal Lett, 2016, 146(11): 2357-2363.
- [4] Ji Y W, Birmingham J, Deimund M A, et al. Steam-dealuminated, OSDA-free RHO and KFF-type zeolites as catalysts for the methanol-to-olefins reaction[J]. Microporous Mesoporous Mater, 2016, 232: 126-137.
- [5] Meng X J, Huang H W, Zhang Q, et al. Conversion of methanol into light olefins over ZSM-11 catalyst in a circulating fluidized-bed unit[J]. Korean J Chem Eng, 2016, 33(3): 831-837.
- [6] Anunziata O A, Cussa J. Applying response surface design to the optimization of methane activation with ethane over Zn-H-ZSM-11 zeolite[J]. Chem Eur J, 2008, 138(1/2/3): 510-516.
- [7] Wang X, Chen H B, Meng F J, et al. CTAB resulted direct synthesis and properties of hierarchical ZSM-11/5 composite zeolite in the absence of template[J]. Microporous Mesoporous Mater, 2017, 243: 271-280.
- [8] Otomo R, Müller U, Feyen M, et al. Development of post-synthetic method for tuning Al content of OSDA-free Beta as catalyst for conversion of methanol to olefins[J]. Catal Sci Technol, 2016, 6(3): 713-721.
- [9] Fyfe C A, Lin Z S, Tong C, et al. efficient syntheses of zeolite ZSM-11 (MEL) at temperatures below 100 °C using very dense gels[J]. Microporous Mesoporous Mater, 2012, 150(1): 7-13.
- [10] Makowski W, Majda D. Equilibrated thermodesorption studies of adsorption of n-hexane and n-heptane on zeolites Y, ZSM-5 and ZSM-11[J]. Appl Surf Sci, 2005, 252(3): 707-715.
- [11] Wei Z H, Zhu K K, Xing L Y, et al. Steam-assisted transformation of natural kaolin to hierarchical ZSM-11 using tetrabutylphosphonium

- hydroxide as structure-directing agent; synthesis, structural characterization and catalytic performance in the methanol-to-aromatics reaction[J]. RSC Adv, 2017, 7(39): 24015-24021.
- [12] Marguta R, Khatib S J, Guil J M, et al. Molecular simulation and adsorption studies of n-hexane in ZSM-11 zeolites[J]. Microporous Mesoporous Mater, 2011, 142(1): 258-267.
- [13] Yu Q J, Cui C Y, Zhang Q, et al. Hierarchical ZSM-11 with intergrowth structures; Synthesis, characterization and catalytic properties [J]. J Energ Chem, 2013, 22(5): 761-768.
- [14] Dyballa M, Becker P, Trefz D, et al. Parameters influencing the selectivity to propene in the MTO conversion on 10-ring zeolites; directly synthesized zeolites ZSM-5, ZSM-11, and ZSM-22[J]. Appl Catal A Gen, 2016, 510: 233-243.
- [15] Dey K P, Ghosh S, Naskar M K. A facile synthesis of ZSM-11 zeolite particles using rice husk ash as silica source[J]. Mater Lett, 2012, 87: 87-89.
- [16] Yu Q J, Meng X J, Liu J W, et al. A fast organic template-free, ZSM-11 seed-assisted synthesis of ZSM-5 with good performance in methanol-to-olefin[J]. Microporous Mesoporous Mater, 2013, 181: 192-200.
- [17] 于庆君, 李春义, 山红红, 等. 纳米棒插接多级孔 ZSM-11 分子筛形貌影响因素研究[J]. 中国石油大学学报, 2016, 40(2): 155-162.
- [18] 付文华, 袁志庆, 王仰东, 等. 协同导向法合成 ZSM-5/ZSM-11 共生分子筛[J]. 化学反应工程与工艺, 2016, 32(5): 400-407.
- [19] Conte M, Xu B, Davies T E, et al. Enhanced selectivity to propene in the methanol to hydrocarbons reaction by use of ZSM-5/11 intergrowth zeolite[J]. Microporous Mesoporous Mater, 2012, 164: 207-213.
- [20] Chen L, Zhu S Y, Wang Y M, et al. One-step synthesis of hierarchical pentasil zeolite microspheres using diamine with linear carbon chain as single template[J]. New J Chem, 2010, 34(10): 2328-2334.

Synthesis of ZSM-11 zeolite using 1,8-diaminooctane as the structure directing agent

Xu Ting^{1,2}, Du Lifang¹, Cen Shiyu¹, Zhao Qianyi^{1,2}

(1. School of Chemistry and Chemical Engineering, Henan Normal University, Xinxiang 453007, China;

2. Henan Key Laboratory of Boron Chemistry and Advanced Energy Materials, Henan Normal University, Xinxiang 453007, China)

Abstract: ZSM-11 is an important solid acid catalyst and is widely used in petrochemical industry. Therefore, the high efficient synthesis of ZSM-11 is highly concerned. In this paper, ZSM-11 zeolites without ZSM-5 hybrid was successfully synthesized in a wide range by using 1,8-diaminooctane as Structure-directing agent(SDA). The effect of speed of horizontal rotation, crystallization temperature, crystallization time and Si/Al ratio on the preparation of the ZSM-11 zeolites were studied. ZSM-11 zeolites with different crystal sizes, morphologies and crystallinities were produced under different synthesis conditions. The crystallinity and morphology of the resulted ZSM-11 zeolites were characterized by X-ray diffraction (XRD) and field emission scanning electron microscopy (FESEM). This study extends efficient synthesis method of the ZSM-11 and gets the best synthetic conditions of ZSM-11 zeolites; horizontal speed of 50 r/min, 160 °C crystallization 48 h.

Keywords: ZSM-11 zeolite; 1,8-diaminooctane; rotating crystallization; crystallization; synthesis conditions

[责任编辑 赵晓华 陈留院]