

VÍZPOZÍCIÓK MEGHATÁROZÁSA NaY TÍPUSÚ ZEOLITBAN

KOVÁCS IMRE

BEVEZETÉS

A JATE Alkalmazott Kémiai Tanszékének egyik kutatási területe a zeolitok szintézisével, szerkezetük módosításával és katalitikus tulajdonságaik vizsgálatával kapcsolatos.

A zeolitok katalitikus centrumainak (és egyéb tulajdonságaiknak) értelmezésében fontos szerepet játszik az egyes fémionok ill. savas centrumok elhelyezkedésének minél pontosabb meghatározása.

A különféle zeolittípusok szilikát vázának szerkezetét röntgendiffrakciós módszerrel már meghatározták. A váz üregrendszerében sikerült meghatározni a fémionok lehetséges tartózkodási helyeit az ún. centrumokat is. Nagyon sok közlemény foglalkozik azzal, hogy a zeolitok kationjai hogyan töltik be ezeket a helyeket. Ma már elmondhatjuk, hogy ebben a témában összefoglaló mű is készült [1]. Az ionpozíciók meghatározásáról azonban tudnunk kell, hogy az a viszonylag sok kristályvizet tartalmazó zeolit-egy kristályokról készült röntgenreflexiók számítógépes kiértékelésén alapul. Az egyes diffrakciós csúcsok intenzitásához a szilikát váz atomjai, a kationok és az őket szolvatáló vízmolekulák is hozzájárulnak. A szerkezet modellezésekor az előző sorrend szerint szokás figyelembe venni a járulékokat, így gyakran a vízmolekulák elhelyezkedésével már nem szoktak törődni.

Munkánk indításakor a következő kérdések merültek fel:

1. Miként változik egy adott alapösszetételű NaY típusú zeolitminta röntgendiffraktogramja a víztartalommal?
2. A zeolitmodell különböző pozícióiban elhelyezett  $H_2O$

molekulák miként befolyásolják a struktúrfaktoranalízissel szimulált diffraktogrammot?

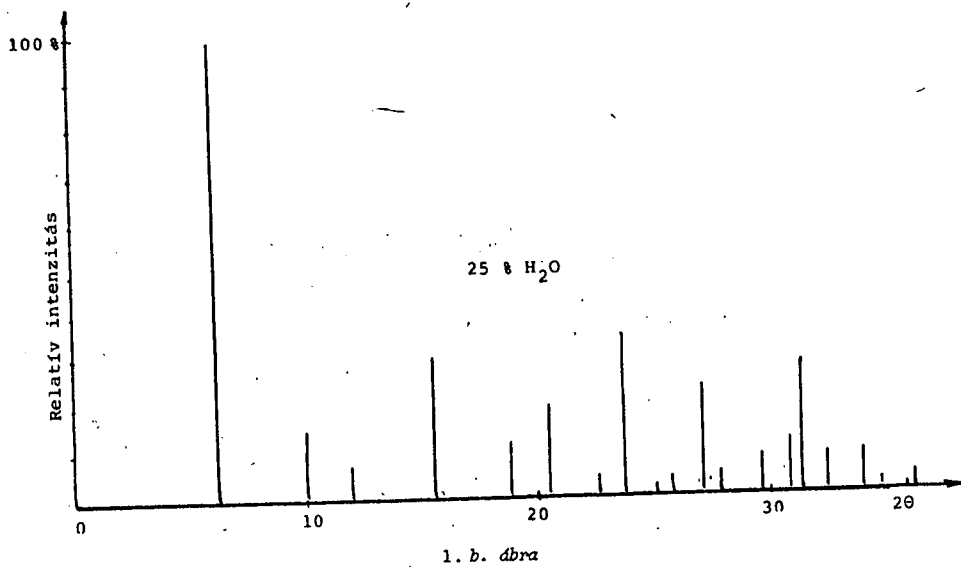
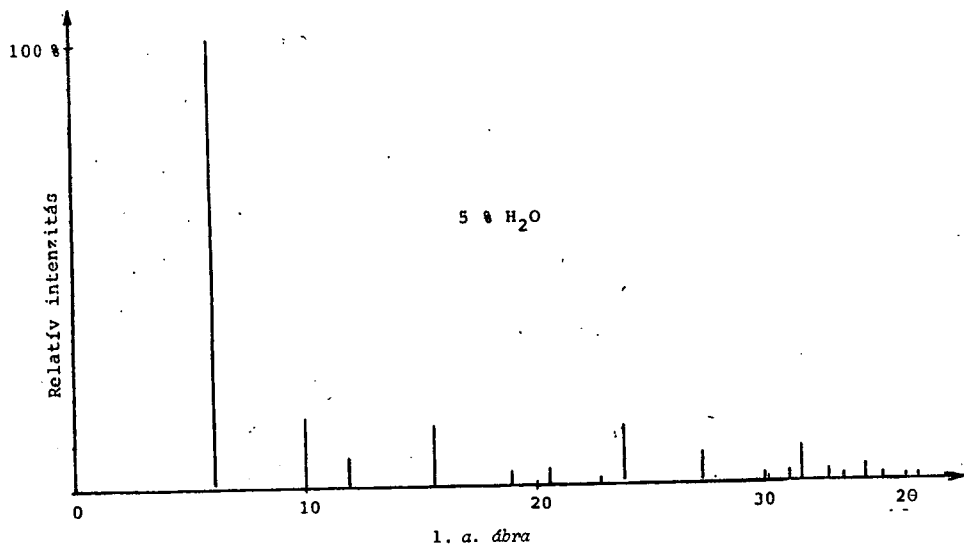
3. Végül a szimulált adatok finomítása valószínűsíti-e a vízmolekulák valamely elrendezését?

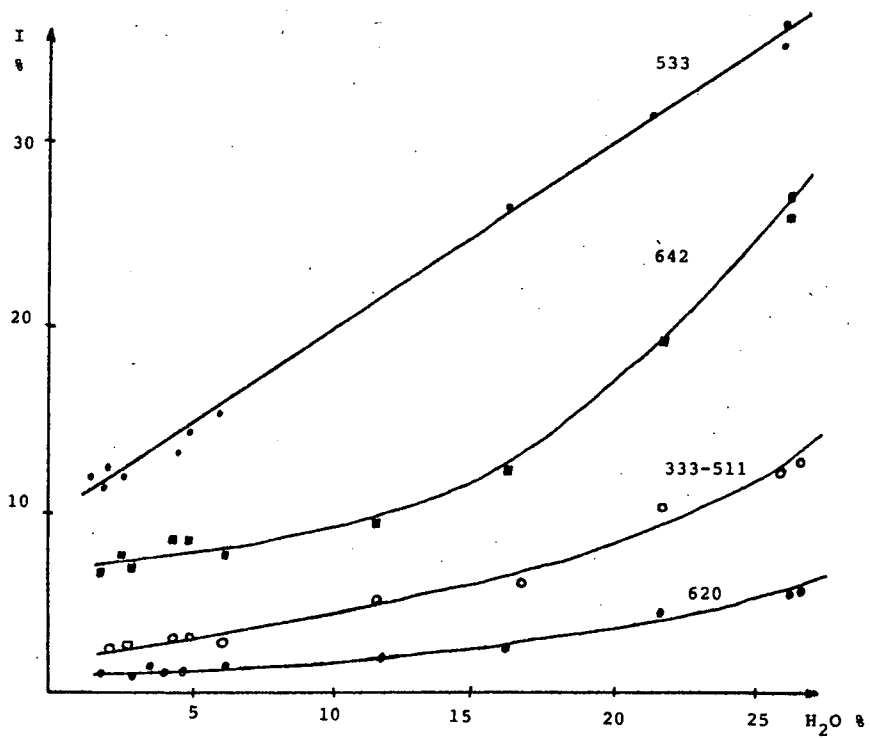
#### KÍSÉRLETI MUNKA, PORDIFFRAKTOGRAMMOK FELVÉTELE

Az Alkalmazott Kémiai Tanszék DRON-3 típusú, szovjet gyártmányú röntgendiffraktométerével végeztük a méréseket. A nagyfeszültségű tápegység 39 kV feszültséggel és 18-20 mA nagyságú árammal hűtötte a röntgenszó katódját, az antikatód rézből készült. A keletkező röntgenfényből Ni szűrővel (vagy LiF monokromátorral a  $\text{CuK}_\alpha$   $\lambda=1,5405 \text{ \AA}$ ) sugárzást állítottunk elő. Debey-Scherrer-féle goniométer elrendezést használtunk. A felvételi sebesség 1/perc volt. Az alkalmazott erősítések 1:10/2.5-4:10/2.5 között változtak. A felvételeket a  $3^\circ$ - $50^\circ$  szögtartományban készítettük el.

A használt zeolit Linde NaY, típusú,  $\text{Na}_{55} \text{Al}_{55} \text{Si}_{137} \text{O}_{384}$  elemicella-összetétellel rendelkező száraz anyagra vonatkoztatva. A nedvességtartalmat tömegméréssel ill. derivatográfiásan határoztuk meg. A "nedves" mintát  $\text{NH}_4\text{Cl}$  oldat felett, a "száraz" mintát tömény kénsavval töltött exikkátorban tartottuk, miután  $60^\circ\text{C}$ - $700^\circ\text{C}$  között 30 perctől 3 óráig hőkezeltünk, majd a mintákat szárított  $\text{N}_2$  atmoszférán töltöttük kvarc mintatartóba és polietilén fóliával letakartuk. A polietilén fólia alkalmazásakor a fólia abszorpciójával nem kellett számolni. A pontos csúcshelyeket fólia nélkül állapítottuk meg.

A különböző nedvességtartalmú mintákról 34 csúcs intenzitását mértük meg. Az intenzitásokat minden diffraktogrammban a legnagyobb intenzitású (111 indexű) csúcs intenzitására normáltuk. Az intenzitást a csúcs alatti terület grafikus integrálásával határoztuk meg. Így az azonos indexű csúcsok relatív intenzitásának nedvességtartalom függését kaptuk meg. A csúcsok többségében a  $\text{H}_2\text{O}$  mennyiségével az intenzitás nőtt, egy esetben lineárisan változott. Sok csúcs nem változott számottevően. Akadtak eltűnő ill. megjelenő csúcsok is. Az 1. ábrán 5 %  $\text{H}_2\text{O}$  mellett a NaY zeolit röntgendiffraktogramma látható. A 2. ábrán látszik néhány intenzitás változása a víztartalommal.





2. *dbra*

## A ZEOLITSZERKEZET MODELLEZÉSE

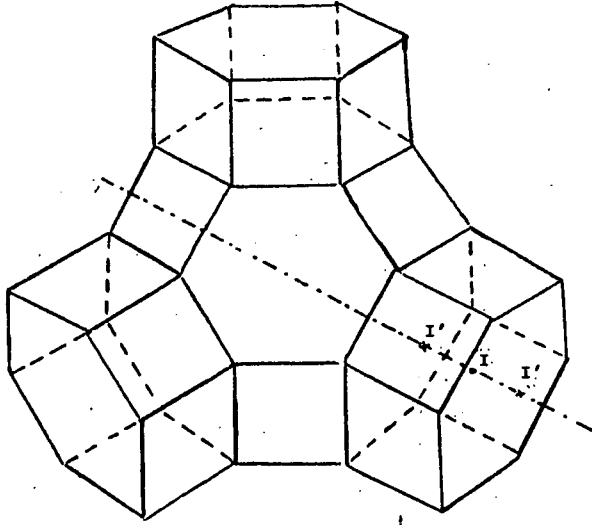
A természetes faujazit és mesterséges analógjai, az X és az Y zeolitok, az Fd3m tércsoport szerint kristályosodnak. Ez a tércsoportja a gyémátnak is. A faujazit szerkezete - a gyémánt szerkezetének ismeretében - úgy képzelhető el, mintha a gyémánt C atomjai helyébe olyan kúbooktaédereket helyeztünk volna, amelynek csúcsait Si (ill. Al) atomok képezik, éleit pedig O-"hidak". A teljes faujazit váz  $T(O_4)_{1/2}^{2-}$  tetraéderekből épül fel úgy, hogy a kúbooktaéder egységek maguk is tetraédesen helyezkednek el. A  $T(O_4)_{1/2}^{2-}$  tetraéderek középpontjában helyezkednek el a "T" atomok: Si vagy Al. Az oxigének két "T" atom között helyezkednek el. A T-O-T szög a gyakorlatban nem  $180^\circ$ , hanem kb.  $140^\circ$ . A T atomok krisztallográfiailag egyenértékűek (192/cella). Az  $O^{2-}$  "ionokból" 4 típus különböztethető meg, cellánként 96. A T pozíciókban lévő Al atomok 4-es koordináltságúak, környezetükben tehát egy negatív töltéstöbblet keletkezik. Ezt kompenzálják a vázhoz koordinatív kapcsolódó kationok. Ha a rendszerben egyéb koordinációra képes szpécieszek vannak, pl. víz, akkor a kationok lokalizálása már nem egyértelmű. Ennek ellenére a zeolitváz üregrendszerében több nevezetes pozíciót szokás megkülönböztetni. Számos szerző mérései alátámasztják, hogy a kationok (és egyéb molekulák) általában ezeken a jól koordinált helyeken találhatók, pl. [2]. A pozíciók a 3. ábrán láthatóak.

### *A faujazit-modell adatai*

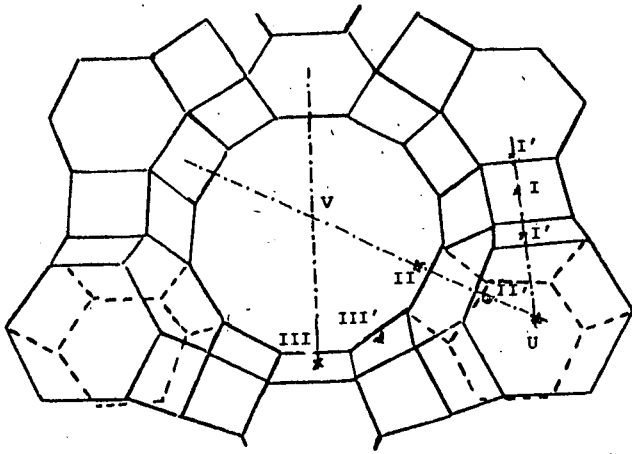
A zeolit struktúrában elhelyezkedő atomok koordinátáit irodalmi adatokból vettük át [1], [2], [4-7]. A hőmozgástényező-értékeket mi választottuk, mivel ezek optimalizálódására nincs mód, és az irodalomban is elég eltérőek az ilyen adatok. Az irodalomban tapasztalható tendenciák szerint, a vázhoz merevebben kötődő atomokra kisebb hőmozgástényező értékeket választottunk.

A T-atomokra  $x=0,125$   $y=0,945$   $z=0,0365$  koordinátákat,  $B=3,5$  hőmozgástényezőt vettünk fel. A betöltést a Si és az Al atomok aránya határozta meg.

A váz oxigénjeinek koordinátái:



3. a. abra



3. b. abra

$O_1$	$x = -y = 0,1065$	$z = 0,0$
$O_2$	$x = y = 0,2525$	$z = 0,141$
$O_3$	$x = y = 0,175$	$z = 0,9655$
$O_4$	$x = y = 0,1785$	$z = 0,320$

Mivel ezen pozíciók multiplicitása csak 96, a betöltés itt is 1. Hőmozgástényezőnek  $B=4$ -et fogadtunk el.

A kationok pozícióinak értékeire és azok betöltésére vonatkozó irodalom nem teljesen egységes. Többet között [2]-ből is látszik (l.a. ábra) némi pozícióváltozási tendencia. Például, a nedvességtartalom csökkenésével azok a kationok, amelyekhez a nedves zeolitban víz (is) koordinálódott, ennek eltávoztása után a jobb koordináció érdekében, más pozíciókba vándorolnak.

A röntgendiffraktogramm csúcsainak megfeleltethető struktúrafaktor-járulékok közül a T-atomok és a vázoxigének pozíciója jó közelítéssel konstansnak tekinthető. Az előbb említett probléma miatt azonban nem tekinthetjük a kationok pozícióit rögzítettnek (még az esetünkben vizsgált, elvileg "jól definiált" zeolitminta esetében sem), mert a kísérleteink során, mesterségesen változtatott víztartalommal egyszerre változhat (sőt, igen valószínűleg változik is!) a kationok pozíciója. Mivel a kationok és a vízmolekulák pozíciójának szimultán meghatározásához olyan nagy számú reflexiós adatot (szöveget és intenzitást) kellene mérni, amely porteknikával nem érhető el, csak olyan számítási stratégiától várhatunk eredményt, amely viszonylag kevés meghatározandó pozícióval (tehát helykoordinátával, illetve betöltési hányaddal, mint ismeretlen paraméterrel) operál. Ennek a megközelítési módnak az alapadatok összeállítása során az a konzekvenciája, hogy nem csak a vízmolekulák, hanem a kationok ( $Na^+$ -k) pozíciójára ill. betöltöttségére is kell (az irodalmi adatok alapján) változó, de egy adott programfuttatás (modell-kísérlet) esetén rögzített, értékeket választanunk.

A modellezés (és a betöltöttségi hányadok finomítása), ha azt a kísérleti eredményekben ismerttetett összes mérési pontra (víztartalomra) ki akarjuk terjeszteni, igen nagy számítógépidőt igénylő feladat. Első közelítésben, hogy a várható, vízpozíciókban mutatkozó eltérés szembetűnő legyen, célszerű két, igen eltérő víztartalmú zeolitminta röntgendiffraktogrammjának a modellezését elvégezni. Legyen ez a két eset az 5 % vizet (tehát elemi celláp-

ként 37,1 H<sub>2</sub>O molekulát), valamint a 25 % vizet (tehát elemi cellánként 235 H<sub>2</sub>O molekulát) tartalmazó zeolitminta modellezése.

Az 5 %-os víztartalmú minta modellezéséhez a következő pozíciókat vettünk figyelembe:

	Pozíció	Hőmozgás- tényező	Multipli- citás
1	I ( $x=y=z=0,0$ )	4,5	16
2	I' ( $x=y=z=0,06$ )	4,5	32
3	II ( $x=y=z=0,24$ )	4,5	32
4	II' ( $x=y=z=0,155$ )	4,5	32

Itt feltételeztük, hogy a Na<sup>+</sup> ionok lokalizációja majdnem teljes, az egyes pozíciók betöltését I: 0,5, I': 0,41, II: 0,875, II': 0,0675 értéknek fogadtuk el.

A cellánkénti 37,1 db vízmolekulát kiindulásul az alábbi 8 pozícióban helyeztük el. (A pozíciók a 3. ábrán láthatóak - a multiplicitást az elemicella szimmetriája határozza meg.)

	Pozíció	Koordináták	Hőmozgás- tényező	Multipli- citás
1	I'	$x=y=z=0,06$	5	32
2	II	$x=y=z=0,24$	5	32
3	II'	$x=y=z=0,155$	5	32
4	U	$x=y=z=0,125$	5	8
5	III	$x=y=z=0,165$	5	32
6	III'	$x=y=-0,184$ $z=0,212$	5,5	96
7	V	$x=y=z=0,5$	5,5	16
8	IV	$x=y=z=0,264$	5,5	32

A 25 % víztartalmú minta modellezése esetén szintén ezeket a lehetséges vízpozíciókat vettük figyelembe.

A kationok gyengébb lokalizáltságát feltételezve, ezen esetben több pozíción helyeztük el a Na<sup>+</sup> ionokat. Így az előbb említett I, III és III' pozícióban is feltételeztük Na<sup>+</sup> ionokat. Az utóbbi kettő hőmozgástényezőjét 5-nek vettük. A betöltési hánya-



dok értéke: I: 0,25, I': 0,32, II: 0,32, II': 0,19, U: 0,0, III: 0,0625, III': 0,25 volt.

Az összetételnek megfelelő, elemi cellánkénti 235 db vízmolekula elhelyezésénél tekintettel kell arra lenni, hogy ilyen sok vízmolekula közt olyanok is vannak, amelyek pozíciója nem lokalizálható. Ezért próbálkoztunk kevesebb (pl. 200 H<sub>2</sub>O) vízmolekulának az adott 8 pozícióba való elhelyezésével is a modellezés során.

Az egyes atomi szórástényezőket, mint  $S$  függvényeit [8] alapján, táblázatosan adjuk meg a programban. Amint az 1. táblázatból látszik, a vázatomokat semlegesen Si, Al ill. O atomonként, a Na<sup>+</sup> ionokat "1+" ionként, a vízmolekulákban szereplő O-eket pedig "1-" ionként vettük fel.

#### A MODELL SZÁMÍTÓGÉPI PROGRAM

Több krisztalográfiai kézikönyv segítségével készítettük a programot, amely az első részében, a mért intenzitástartományból meghatározza az  $F_{\text{mért}}$  szerkezeti tényezők abszolút értékeit. A következő összefüggés alapján:

$$I_{\text{mért}} = M \cdot A \cdot F^2 \cdot G \cdot L$$

ahol  $M$ : a lapgyakoriságot veszi figyelembe (egykristály esetén=1)

$A$ : abszorpciós tényező

$F$ : szerkezeti tényező (strukturfaktor)

$G$ : geometriai elrendezéstől függ, esetünkben

$$G = (2 \sin^2 \theta \cdot \cos \theta)^{-1}$$

$L$ : Lorentz-féle polarizációs faktor

$$L = (1 + \cos^2 2\theta) / 2$$

Ezenkívül a program egy feltételezett szerkezethez számítja a  $F_{\text{szám}}$  szerkezeti tényezőket:

$$F_{\text{szám}} = \sum_N f_i \cdot e \frac{b \cdot \sin^2 \theta}{\lambda^2}$$

Az elemi cellát a program az Fd3m tércsoport szimmetriaművele-

<u>S</u>	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8	0,9	1,0	1,1	1,2	1,3	1,4
Si	14,0	11,3	9,4	8,2	7,1	6,1	5,1	4,2	3,4	2,9	2,6	2,3	1,0	0,0
Al	13,0	11,0	8,9	7,7	6,6	5,5	4,5	3,7	3,1	2,6	2,3	2,0	1,0	0,0
O	8,0	7,1	5,3	3,9	2,9	2,2	1,8	1,6	1,5	1,4	1,3	1,3	1,0	0,0
Na <sup>+</sup>	10,0	9,5	8,2	6,7	5,2	4,0	3,2	2,6	2,2	1,9	1,7	1,6	1,0	0,0
H <sub>2</sub> O	9,0	7,5	5,4	3,8	2,8	2,1	1,8	1,5	1,5	1,4	1,3	1,3	1,0	0,0

1. táblázat. Atomi szórástényezők

teit az ún. aszimmetrikus egységre alkalmazva állítja elő. A tércsoport leírását [4] alapján adtuk meg. Az atomi szórástényezőket [1]-ből táblázatosan, az aktuális  $S = \sin\theta/\lambda$  értékhez interpolálva használtuk.

A mért és számított szerkezeti tényezők alapján kaptuk  $R$ -t.

$$R = \frac{|F_{\text{mért}}| - |F_{\text{szám}}|}{|F_{\text{mért}}|}$$

Azon csúcsok esetén, amikor  $h_1 h_1 \ell_1$  ill.  $h_2 k_2 \ell_2$  ugyan eltér, de fennáll, hogy  $h_1^2 + k_1^2 + \ell_1^2 = h_2^2 + k_2^2 + \ell_2^2$  a lapgyakoriságot külön-külön vettük figyelembe.

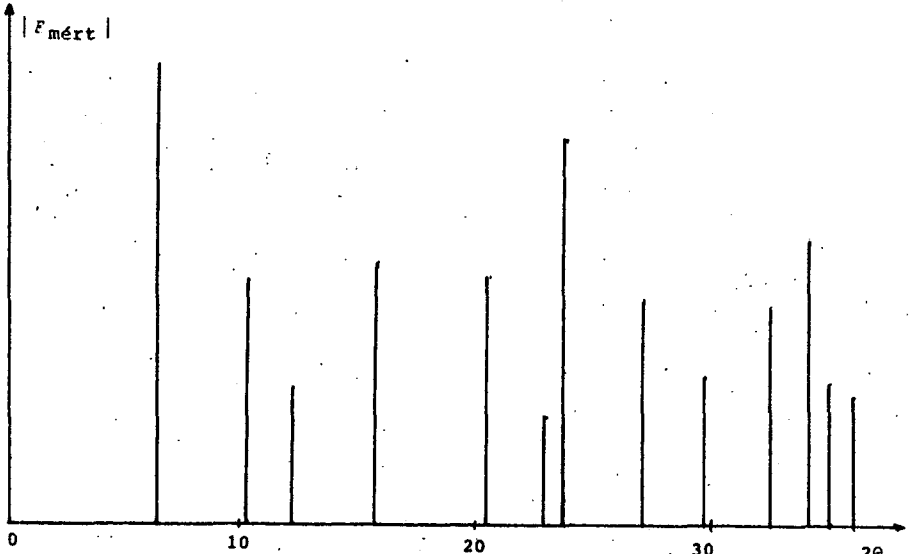
A szerkezet finomítása során, az egyes atomok helyének változtatása helyett, az aszimmetrikus egység egyes pozícióinak betöltési valószínűségét változtatta a program. Természetesen a zeolit alapvázat változatlanul hagytuk, csak a "mozgékony" komponensek: kationok ill. víz előfordulási valószínűségét módosítva kerestük az  $R$  függvény minimumát.

#### SZÁMÍTÁSI EREDMÉNYEK

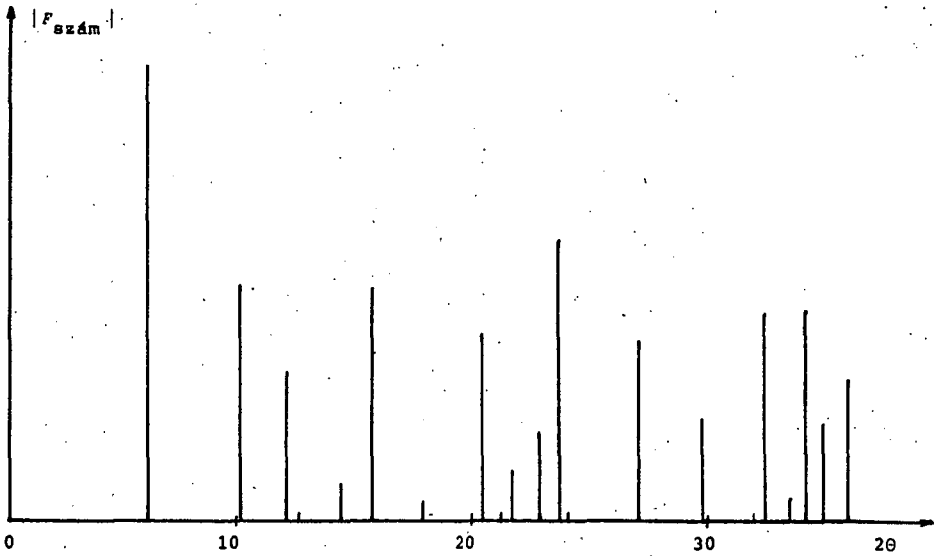
A MODELLEZÉS nevű programmal végzett számítások eredményeit a 2-5. táblázaton mutatjuk be.

Az 5 % víztartalmú zeoliton kapott diffraktogramok kiértékelése (lásd 2. és 3. táblázat) azt mutatja, hogy a vízmolekulák a vizsgált NaY zeolitmintán esetében a III' és a V pozícióban helyezkednek el. Ez a megállapítás azért tűnik reálisnak, mert sem a  $\text{Na}^+$  ionok (irodalmi adatok [2] alapján modellezett) két-fajta elosztása, sem a tekintetbe vett vízmolekulák számának változtatása nem befolyásolta a finomítás (paraméterbecslés) végeredményét. Ezt az eredményt alátámasztja az is, hogy [7] szerzői - hasonló zeolittípus esetén - szintén a III' pozícióban mutatták ki a vízmolekulákat. (Feltehető, hogy mérési eredményeik finomításakor [7] szerzői nem vettek figyelembe minden általunk vizsgált lehetséges pozíciót, tehát az V-t sem.) A 4. ábrán a mért és modellezett szerkezeti tényezők (strukturalfaktorok) láthatóak.

A 25 % víztartalmú NaY mintára kapott számítási eredmények még nem tekinthetők véglegesnek. A sok vízmolekulát tartalmazó rendszer esetében a megoldandó modellezési, ill. paraméter-



4. a. ábra



4. b. ábra

Pozíció Na <sup>+</sup>	37,1 H <sub>2</sub> O			28 H <sub>2</sub> O			22 H <sub>2</sub> O		
I 0,5	0,0			0,0			0,0		
I' 0,41	0,25	0,0	0,0	0,12	0,0	0,0	0,1	0,003	0,0
II 0,875	0,15	0,001	0,0	0,14	0,0	0,0	0,1	0,0	0,0
II' 0,063	0,25	0,001	0,0	0,12	0,0	0,0	0,1	0,0	0,0
U 0,063	0,25	0,0	0,001	0,12	0,0	0,0	0,1	0,0	0,0
III'	0,04	0,235	0,235	0,04	0,132	0,133	0,1	0,102	0,104
IV	0,125	0,0	0,0	0,12	0,003	0,0004	0,1	0,0	0,0
V	0,25	1	1	0,22	1	0,999	0,1	0,773	0,764
iteráció	0	1500	1800	0	1500	1800	0	1500	1800
R	0,4132	0,3242	-	0,3977	0,3293	0,3288	0,3920	0,3338	0,3336
R'	0,5379	0,5823	-	0,5109	0,5823	-	0,4769	0,55	-

2. táblázat. A modellezés eredménye 51,1 Na<sup>+</sup> lokalizálásával 5 % víztartalomnál

Pozíció Na <sup>+</sup>	37 H <sub>2</sub> O			28 H <sub>2</sub> O			22,2 H <sub>2</sub> O		
I 0,4	0,0			0,0			0,0		
I' 0,4	0,25	0,0	0,0	0,12	0,0	0,0	0,1	0,0	0,0
II 0,5	0,25	0,004	0,0	0,14	0,0	0,0	0,1	0,0	0,0
II' 0,1	0,25	0,001	0,0	0,12	0,001	0,0	0,1	0,0	0,0
U	0,25	0,0	0,0	0,2	0,001	0,0	0,1	0,001	0,0
III	0,125	0,0	0,0	0,12	0,0	0,0	0,1	0,0	0,0
III'	0,04	0,243	0,243	0,04	0,133	0,151	0,4	0,083	0,083
IV	0,125	0,0	0,0	0,12	0,0	0,001	0,1	0,002	0,0
V	0,25	0,949	0,956	0,22	1,0	0,889	0,1	0,889	0,892
iteráció	0	1500	1800	0	1500	1800	0	1500	1800
R	0,3835	0,2768	0,2765	0,3628	0,2824	0,2821	0,3615	0,2886	0,2884
R'	0,6037	0,6317	-	0,5845	0,2821	-	0,5565	0,6263	-

3. táblázat. A modellezés eredménye 38,4 Na<sup>+</sup> lokalizálásával, 5 % víztartalomnál

Pozíció Na <sup>+</sup>	229,8 H <sub>2</sub> O			188 H <sub>2</sub> O			165 H <sub>2</sub> O		
I 0,25	0,0			0,0			0,0		
I' 0,32	0,78	0,902	0,925	0,6	0,0	0,0	0,5	0,0	0,0
II 0,32	0,78	1	0,907	0,6	0,989	0,968	0,5	0,605	0,596
II' 0,19	0,78	0,003	0,395	0,6	0,573	0,587	0,5	0,158	0,24
U 0,0	0,625	0,918	0	0,5	0,0	0,0	0,5	0,317	0,044
III 0,062	0,938	0,563	0,456	0,8	0,003	0,06	0,7	0,007	0,0
III' 0,25	0,833	1	1	0,7	1	1	0,7	0,947	0,943
IV	0,938	0,987	1	0,8	0,811	0,814	0,6	0,984	1
V	0,625	1	1	0,5	1	1	0,3	1	1
iteráció	0	900	1700	0	1500	1700	0	1500	1700
R	0,8267	0,7867	0,7837	0,7186	0,6514	-	0,7031	0,6354	-
R'	0,6642	0,6374	-	0,6444	0,6407	-	0,6218	0,6438	-

4. táblázat. A modellezés eredményei 55 Na<sup>+</sup> lokalizálásával, 25 % víztartalomnál

Pozíció Na <sup>+</sup>	229,8 H <sub>2</sub> O			188 H <sub>2</sub> O			165 H <sub>2</sub> O		
I 0,2	0,0			0,0			0,0		
I' 0,3	0,78	0,941	0,94	0,6	0,0	0,0	0,5	0,0	0,0
II 0,3	0,78	0,996	1	0,6	0,874	0,876	0,5	0,814	0,809
II' 0,12	0,78	0,3	0,296	0,6	0,381	0,384	0,5	0,252	0,255
U 0,05	0,625	0,0	0,004	0,5	0,004	0,0	0,5	0,0	0,0
III 0,05	0,938	0,449	0,446	0,8	0,155	0,13	0,7	0,065	0,063
III' 0,2	0,933	1,0	1	0,7	1	1	0,7	0,948	0,948
IV	0,938	0,998	1	0,8	0,967	0,965	0,6	0,699	1
V	0,625	1,0	1	0,5	1	1	0,3	1	0,704
iteráció	0	900	1500	0	1500	1700	0	1500	1700
R	0,8182	0,7721	0,772	0,7114	0,644	-	0,6954	0,6241	-
R'	0,6682	0,6152	-	0,6481	0,6417	-	0,6257	0,6233	-

5. táblázat. A modellezés eredményei 47 Na<sup>+</sup> lokalizálásával, 25 % víztartalomnál



becslési feladat több, feltehetően közel egyenértékű megoldásra ad lehetőséget, tehát az iteráció hatékonysága kisebb, ezért lassabban közelíthető meg (a feltehetően létező) optimum. Így más alapmodellekkel, esetleg a  $\text{Na}^+$  ionok elhelyezésének szimultán optimalizálásával is érdemes folytatni a számítógépes kiértékelést.

A fenti megállapításokat az is alátámasztja, hogy míg az 5 % víztartalmú mintánál a kb. 2500 szimplex lépés  $R=0,3$ -es értékhez vezetett, a 25 % víztartalmú mintánál ugyanennyi iterációval nem sikerült 0,6-nél kisebb  $R$ -értéket elérni.

A modellek futtatásakor (R-55-ös számítógépen) 3000 iteráció CPU-ideje nem lépte túl a 4 percet.

A szerkezet pontosabb megismerését eredményezheti a változók számának további növelése (több figyelembe vett pozíció, hőmozgás tényezők illesztése), az induló feltételek, modellek variálása. flymódon lehetőség nyílhat a nagyobb víztartalmú szerkezet meghatározására is. A módszer ezenkívül segítséget nyújthat ioncsere vizsgálatában vagy a víz helyett más, egyszerűbb molekulák megkötődési helyének meghatározásában is.

#### ÖSSZEFOGLALÁS

Egy adott alapösszetételű NaY zeolithból különböző víztartalmú mintákat készítettem. Az egyes minták víztartalmát tömegméréssel és dervatográfiásan meghatároztam. A víztartalom állandóságát a tárolás során exszikkátorral, a mérések során a mintatartó polietilén-fóliás lefedésével biztosítottam.

A zeolitminták diffraktogrammjaik felvétele alapján meghatároztam 34 jól mérhető reflexió relatív intenzitásának a változását a víztartalom függvényében.

Számítógépi programot készítettem a faujazit szerkezet röntgendiffrakciós képének modellezésére, és az egyes centrumok ionokkal ill.  $\text{H}_2\text{O}$  molekulákkal való betöltöttségének, mint ismeretlen paramétereknek a becslésére.

A mért diffraktogramokból, a számítógépi program segítségével megállapítottam, hogy az 5 % vizet tartalmazó NaY zeolithban a vízmolekulák a III' és az V pozícióban helyezkednek el.

## KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

Ezúton mondok köszönetet Dr. Fejes Pál tanszékvezető egyetemi tanárnak, mert lehetővé tette az Alkalmazott Kémiai Tanszéken dolgozatom elkészítését.

Köszönetemet fejezem ki Dr. Varga Károly egyetemi docensnek, témavezetőmnek elméleti és gyakorlati tanácsaiért, melyek munkámhoz igen nagy segítséget nyújtottak, valamint Bana Ferencné vegyésztechnikusnak, aki a gyakorlati munkában volt segítségemre.

Végül köszönetemet fejezem ki az Alkalmazott Kémiai Tanszék minden dolgozójának.

## IRODALOMJEGYZÉK

- [1] D. W. Breck, *Zeolite Molecular Sieves* (Structure, Chemistry, and Use), John Wiley et. Sons, New York-London-Sydney-Toronto, 1962.
- [2] W. J. Mortier, E. Van den Bossche, J. B. Uytterhoeven, Influence of the Temperature and Water Adsorption on the Cation Location in Na-Y Zeolites, *Zeolites*, 4, 1984.
- [3] W. J. Mortier, *Complication of Extra Framework Sites in Zeolites*, Butterworth et. Co., Guildford, 1982.
- [4] *International Tables for X-Ray Crystallography*, Kynoch Press, Birmingham, 1962.
- [5] K. Varga, I. Kiricsi, Gy. Argay, Röntgendiffraktometrische Untersuchungen des Einbaus von Silberionen in Zeolite des Y-typs., *Acta Phys. et. Chim.*, Szeged, 25, 1979.
- [6] J. V. Smith, Origin and structure of Zeolites, *Zeolite Chemistry and Catalysis*, 7, 1979.
- [7] J. Marti, J. Soria, F. H. Cano, Cation Location in Hydrated NaY Zeolites, *J. of Colloid and Interface*, 60, 1977.
- [8] H. Klug, E. Alexander, *X-Ray Diffraction Procedures*, John Wiley et. Sons, London, 1962.