

Title	ゼオライト合成におけるアルコール添加の影響
Author(s)	窪田, 要一
Citation	
Issue Date	2000-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2676
Rights	
Description	Supervisor: 佐野 庸治, 材料科学研究科, 修士

ゼオライト合成におけるアルコール添加の影響

窪田 要一 (佐野研究室)

【緒言】高シリカゼオライトの合成には、アミン、ジアミン、アミノアルコール等様々な有機物が結晶化促進剤として用いられている。しかし、ゼオライトの結晶化に影響を与える因子は多く、また、それら調製因子が複雑に相互作用しているため結晶化促進剤の役割は依然として明らかにされていない。ところで、当研究室では比較的分子構造の簡単な脂肪族アルコール存在下でのゼオライト合成について検討しており、*n*-BuOH 存在下、アルカリ源に KOH を用いると種々のゼオライト (TON, MER, LTL) が得られることを見出した。そこで本研究では、アルカリ源、シリカ源および添加アルコールの種類を変えてゼオライト合成を行い、アルコールの役割について検討した。

【実験】ゼオライト合成は、シリカ源にコロイダルシリカ、フュームドシリカ、オルトケイ酸テトラエチルおよび石英、アルミナ源に硝酸アルミニウム、結晶化促進剤に各種脂肪族アルコール (ROH)、アルカリ源に MOH (M; Li, Na, K, Cs, Rb) および蒸留水より調製した水性ゲル混合物 [SiO₂-0.014 Al₂O₃-0.1 K₂O-0 ~ 1 ROH-40 H₂O] を内容積 300 ml のステンレススチール製オートクレーブに仕込み、160 °C、48 ~ 72 時間攪拌しながら、自己圧下で水熱処理することにより行った。生成した固形物は蒸留水で洗浄し、120 °C で一晩乾燥した。得られた生成物のキャラクタリゼーションは、XRD, XRF, FT-IR, SEM および ¹³C CP-MAS NMR により行った。また、出発ゲル混合物の水層部分の元素分析は ICP を用いて行った。

【結果および考察】まず、*n*-BuOH 存在下種々の BET 比表面積のシリカ源を用いてゼオライト合成を行った。得られたゼオライトの結晶構造は用いたシリカ源に大きく依存し、BET 比表面積の小さなシリカ源 (BET 比表面積 1-5 m²/g) から主には MFI 型ゼオライトが、BET 比表面積の大きなシリカ源 (BET 比表面積 50-300 m²/g) から TON 型ゼオライトが生成した。そこでシリカの溶解性に着目し、出発ゲルの水層中の Si 濃度と生成物の関係を検討した。その結果を Fig. 1 に示す。なお、比較のためアルコール無添加の結果も併せて示す。この図から明らかなように、アルコールの添加の有無に関わらず、シリカの溶解性がゼオライトの結晶構造に大きく影響を与えていることが明らかとなった。また、アルコール無添加でも MFI および TON 型ゼオライトが得られていることを考慮すれば、出発ゲルの水層中でゼオライト核発生が起きていること、およびその核の構造は Si 濃度に大きく依存していることを示している。なお、*n*-BuOH 無添加の出発ゲルの水層の Si 濃度は *n*-BuOH 添加に比べて大きな値を示した。また、合成直後の MFI および TON 型ゼオライトの FT-IR および ¹³C CP-MAS NMR スペクトルから、これらゼオライトの細孔内には *n*-BuOH 分子が存在していることが確認された。

以上の結果より、*n*-BuOH はテンプレート剤としての作用のほかに、出発ゲル混合物中の Si 濃度を変化させ、ゼオライト核形成を制御していることが明らかとなった。

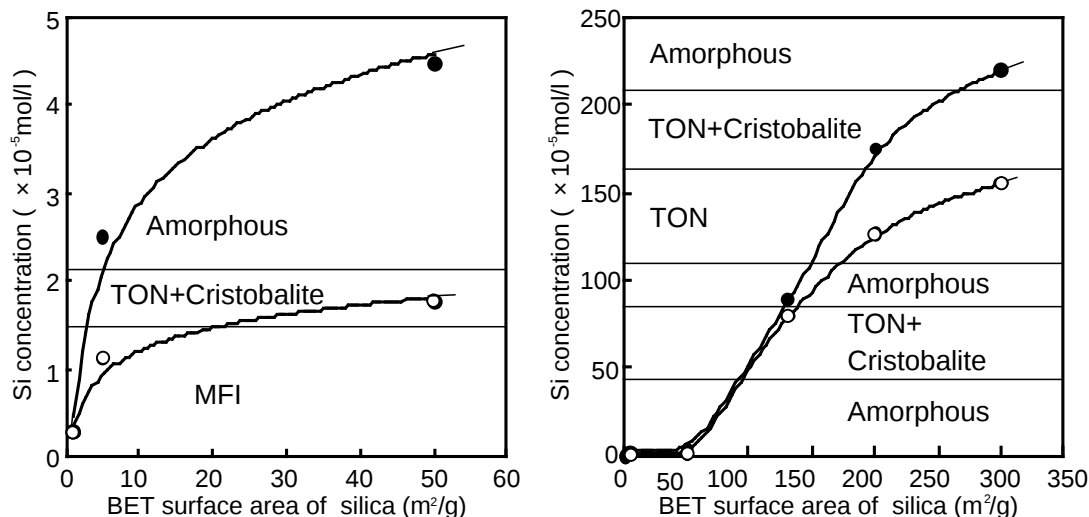


図 1: Relationship between BET surface area of silica and Si concentration in aqueous phase of synthesis gel mixture^{a)}.

○ ; With *n*-BuOH, ● ; Without *n*-BuOH

a) Aging condition ; 60°C, 1 hr

keywords

ゼオライト合成, *n*-BuOH, シリカ源, Si 濃度