

| | |
|--------------|---|
| Title | RbOHをアルカリ源に用いたモルデナイトの合成 |
| Author(s) | 八尾, 佳幸 |
| Citation | |
| Issue Date | 2005-03 |
| Type | Thesis or Dissertation |
| Text version | none |
| URL | http://hdl.handle.net/10119/3176 |
| Rights | |
| Description | Supervisor:佐野 庸治, 材料科学研究科, 修士 |

1 緒言

一次元細孔構造を有するモルデナイト(MOR)は触媒や吸着剤等として工業的に広く用いられているが、耐熱性、耐酸性のさらなる向上を目的に高シリカMORの直接水熱合成に関する研究が活発に行われている。最近、当研究室ではテトラエチルアンモニウム水酸化物 (TEAOH) を structure-directing agent に、NaFをフッ素源に用いることによりSi/Al比約30の高シリカMORが得られることを見出した。ところで、アルカリ源に用いるアルカリ金属種によりゼオライトの結晶化挙動および物性が著しく影響されることはよく知られている。そこで本研究では、MOR合成に及ぼすアルカリ源の影響を明らかにするため様々なアルカリ金属水酸化物を用いて水熱合成を行った。

2 実験方法

ゼオライト合成には以下のモル組成を有する出発ゲルを用いた。Si/Al=10-25, MOH/Al(OH)₃=3-20 (M=Na,K,Rb), TEAOH/SiO₂=0-0.3, H₂O/SiO₂=15。調製した水性ゲル混合物を内容積 30ml のステンレス製オートクレーブに仕込み、静置条件下、170 で水熱合成を行った。生成物のキャラクタリゼーションはXRD, XRF, ICP, SEM, N₂吸着および²⁷Al MAS NMR により行った。

3 結果と考察

出発水性ゲルの Si/Al 比, OH/SO₂ 比等を種々に変化させてゼオライト合成を行ったところ、アルカリ源にRbOHを用いてもSi/Al比8~16, OH/SO₂比0.6, TEAOH/SiO₂比0.3の極めて狭い範囲でMORを単一相で得ることができることを見出した。Fig.1にはTEAOH存在下RbOHをアルカリ源に用いたMOR合成の結晶化曲線を示す。なお、比較のためTEAOH無添加の結果も併せて示す。図から明らかなようにTEAOH添加により結晶化速度は増大することおよび結晶化には少なくとも約6日間かかることが明らかとなった。Fig.2には結晶化時間6日間のMORのXRDパターンとSEM写真を示す。RbOHをアルカリ源に用いてもTEAOH添加の有無に関らず結晶性の高い15 μ m程度の比較的大きな結晶が得られていることがわかった。TEAOHを用いないで合成したMORのアルカリ金属/Al比は1であったが、TEAOH添加で合成したMORのアルカリ金属/Al比は0.8であった。このことは合成直後のMOR細孔中にはTEA⁺カチオンが存在していることを示している。焼成によりかさ高いTEA⁺カチオンは分解しH⁺になるためTEAOH添加、無添加で合成したMORの吸着挙動には違いが予想される。Fig.3にはNaOHおよびRbOHを用いて合成したMORのベンゼン(0.32 \times 0.65 \times 0.75nm)の吸着等温線を示す。ベンゼン吸着量に大きな違いが観測された。この吸着量の違いは、細孔内に存在するNa⁺(0.19nm)とRb⁺(0.296nm)カチオンの大きさの差とほぼ一致した。

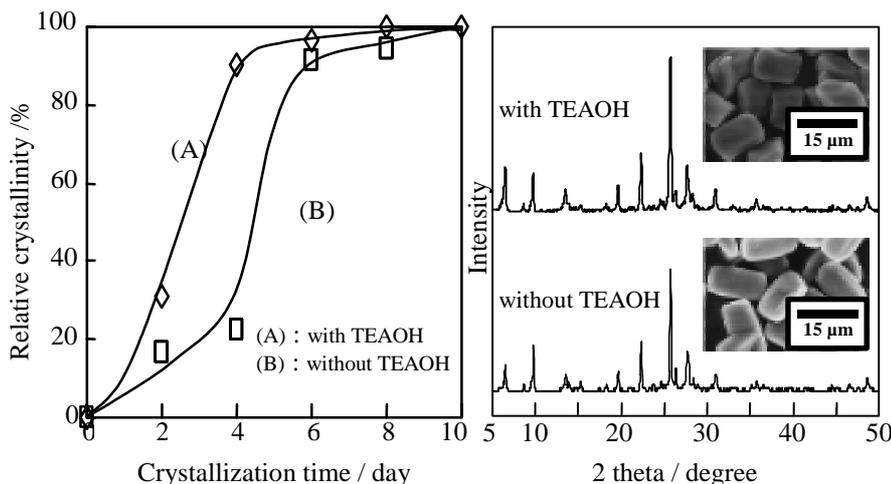


Fig.1 Crystallization curves of Rb-MORs synthesized with and without TEAOH.

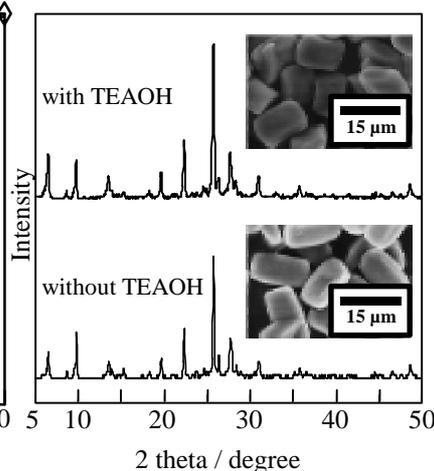


Fig.2 XRD patterns and SEM images of Rb-MORs synthesized with and without TEAOH.

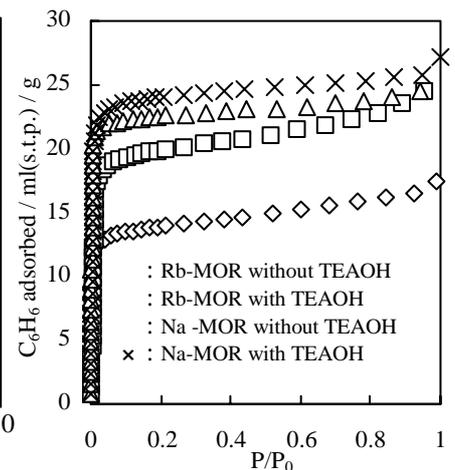


Fig.3 Benzene adsorption isotherms on Na- and Rb-MORs synthesized with and without TEAOH.