

## B122

## MCM-41 を用いた水中の水酸化テトラメチルアンモニウムの分離回収

(北九大国際環境工) ○(学)村上未宇希・(正)西浜章平\*・(正)吉塚和治

近年、半導体・液晶製造等でフォトレジスト現像液として使用されている水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) は、強アルカリで難分解性の窒素化合物であり、生態毒性があるため、廃水中から分離回収する必要がある。本研究では、吸着法を利用した新規な TMAH の分離・回収プロセスの確立を目的とした。吸着剤としては、メソポーラスシリカの一種である MCM-41 を使い、TMAH の吸着分離特性をバッチ法およびカラム法を用いて検討を行った。

## 【実験】

MCM-41 の調製は、TMAH 水溶液に界面活性剤および TEOS(オルトケイ酸テトラエチル)を混合し、耐圧容器中で 100°C、24 時間水熱合成した。ろ過・乾燥させた後、540°C で 8 時間焼成した。構造規定剤である界面活性剤には臭化セチルトリメチルアンモニウム (C<sub>16</sub>TMABr、以下 C<sub>16</sub>) または臭化ドデシルトリメチルアンモニウム (C<sub>12</sub>TMABr、以下 C<sub>12</sub>)、およびこれらを 1:1 (以下 C<sub>12</sub>/C<sub>16</sub> = 1) で混合したものを用いた。調製した MCM-41 は TEM、XRD にてキャラクタライズした。バッチ吸着実験は、TMAH 水溶液と MCM-41 を 25°C で 2 時間以上振盪した。カラム吸脱着実験は、アルミナバインダーにより 1 mm に造粒した吸着剤を用い、pH = 10 で 10 ppm に調整した TMAH 水溶液を流して行った。溶離は、pH = 2 の塩酸を用いて行った。TMAH 濃度は、イオンクロマトグラフで測定した。

## 【結果と考察】

調製した吸着剤は XRD により MCM-41 であることを確認した。MCM-41 の TEM 画像 (Fig. 1) より、チャンネルが規則正しく配列することを確認した。Table 1 に、MCM-41 の窒素吸着データを、BJH 法によって解析して得られた平均細孔径と、吸着等温実験により求めた pH = 10 での TMAH の飽和吸着量を示す。MCM-41 の細孔径は、調製時の界面活性剤のアルキル側鎖の炭素鎖長に伴い増大し、加えてそれに伴い、TMAH の吸着量も増加した。これは、細孔径が大きいほど、TMAH を細孔内に取り込みやすくなるためであると考えられる。

バッチ吸着実験により、最も吸着能の高かった C<sub>16</sub> 型 MCM-41 を用いてカラム吸脱着実験を行った。破過曲線を Fig. 2(a)に示す。B.V.が 2000 を超えるまで TMAH は完全に吸着され、溶出液中の TMAH 濃度は 0 であった。破過曲線から算出した吸着量は 0.492 mmol/g となり、造粒により吸着能が低下したことが示された。塩酸による溶離曲線を Fig. 2(b)に示す。溶離率は 89.8% となりほぼ定量的な吸着-溶離が達成できた。また、溶離液中の TMAH は最大 400 ppm まで濃縮することができた。

今後は、共雑物質の影響などについて検討を進め、効率的な TMAH の分離回収プロセスの構築を目指す。

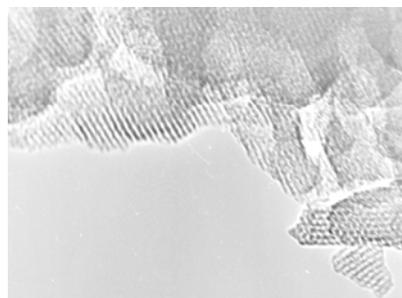


Fig. 1 MCM-41 の TEM 画像

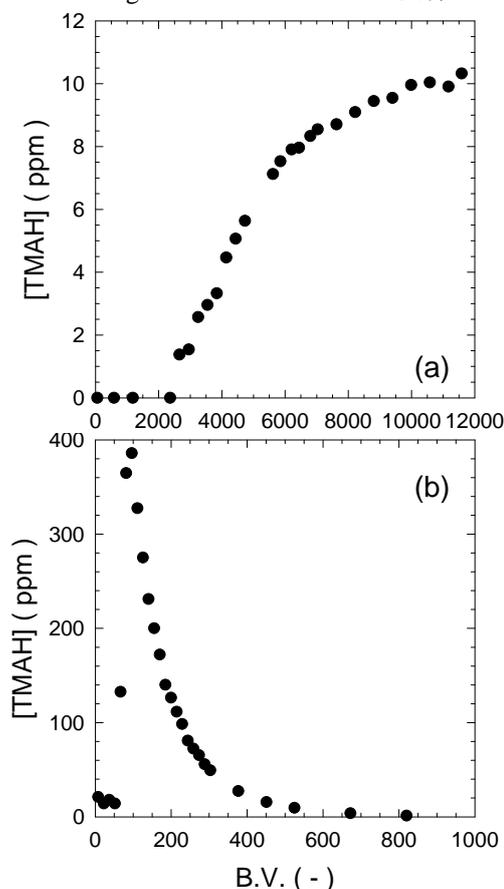


Fig. 2 MCM-41 による TMAH の (a)破過曲線および(b)溶離曲線

Table 1 調製した MCM-41 の細孔径  $d_p$  と飽和吸着量  $q_{max}$ 

	$d_p$ (nm)	$q_{max}$ (mmol/g)
C <sub>16</sub> 型	2.71	1.33
C <sub>12</sub> /C <sub>16</sub> = 1 型	2.44	1.20
C <sub>12</sub> 型	2.18	1.13

〒808-0135 北九州市若松区ひびきの 1-1  
TEL: 093-695-3283, FAX: 093-695-3365  
E-mail : nishihama@env.kitakyu-u.ac.jp