

1.緒言

結晶性アルミノケイ酸塩であるゼオライトは分子篩能、固体酸性、イオン交換能を有しており、触媒や吸着剤として広く用いられている。しかし、ゼオライトの細孔径は炭化水素の分子径と同程度であるため、反応活性は細孔内での拡散抵抗の影響を受けやすい。さらに、細孔入口近傍でのコーク析出により細孔が閉塞し、見かけ上活性が劣化するという問題がある。当研究室では、ゼオライト結晶のナノサイズ化によりこれらの問題が解決されると考え、水/界面活性剤/有機溶媒を反応場としたゼオライトナノクリスタルの新規合成方法の開発を行い¹⁾、MFI型²⁾やMOR型³⁾ゼオライトナノクリスタルの合成に成功した。本合成法では、界面活性剤によるゼオライト前駆体と結晶表面の安定化効果が結晶性とナノサイズ化に影響を及ぼしていると考えられる。本研究では、有機溶媒を使用せず界面活性剤のみを合成溶液に添加した。そして、界面活性剤の添加量を変化させ、界面活性剤の安定化効果がMORゼオライトの結晶性に及ぼす影響を検討した。

2.実験方法

オルトケイ酸テトラエチル(Si源)、アルミニウムイソプロポキシド(Al源)、水酸化ナトリウム、テトラエチルアンモニウムヒドロキシド(TEAOH)、界面活性剤(ポリオキシエチレン(15)オレイルエーテル(O-15))を含む水溶液を調製した。尚、水溶液中のSi濃度、Si/Al、Na/Al、Si/TEAOHはそれぞれ0.75 mol/L、12.5、6、3とし、Si/O-15を2、5、20、∞と変化させた。この溶液をオートクレーブに移し、150°Cで5日間水熱処理しゼオライトを合成した。得られた試料を洗浄・乾燥した後、550°Cで12時間焼成した。形状及び結晶性は走査型電子顕微鏡(SEM)、X線回折装置(XRD)により、細孔特性は窒素吸着法により評価した。

3.結果と考察

Fig.1 に合成した試料の XRD パターンを示す。Fig.1 より界面活性剤の添加量によらず MOR 型のパターンが確認された。Fig.2 に各試料の窒素吸着等温線を示す。Fig.2 より、界面活性剤を用いて合成した試料((a)~(c))は、界面活性剤を用いずに合成した試料((d))に比べ $P/P_0=0$ 付近での吸着量が増加していることが確認される。これより、界面活性剤の添加により細孔特性が向上することが明らかとなった。これは、界面活性剤が生成したゼオライトに吸着することで、核や結晶

表面を安定化し、細孔特性のよいゼオライトが形成される為であると考えられる。

合成したゼオライトの SEM 写真を Fig.3 に示す。界面活性剤の添加量が多いほど結晶サイズが大きくなることが確認できる。これは、界面活性剤の濃度が濃くなることによりゼオライト前駆体の衝突が少なくなり、核発生よりも核成長が進行するためである。よって、界面活性剤により結晶サイズの制御が可能であると示唆される。

本研究は NEDO 平成 18 年度産業技術研究助成事業(06B44702a)からの助成によって行われた。

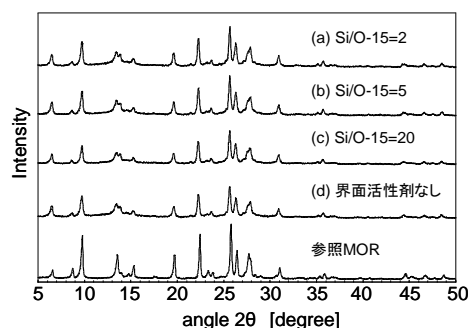


Fig.1 試料の XRD パターン

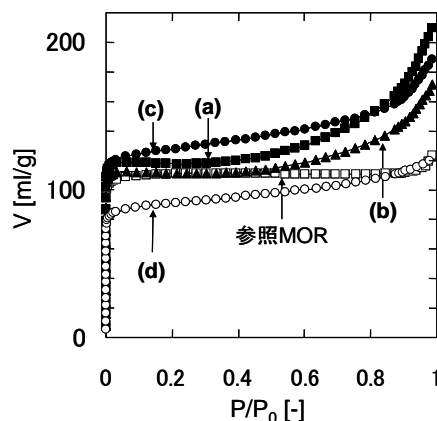


Fig.2 窒素吸着等温線

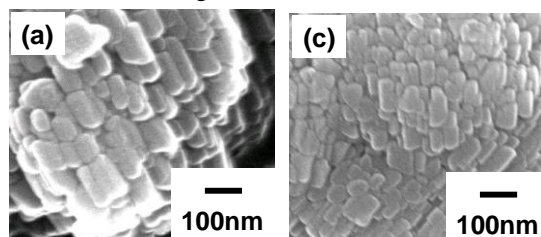


Fig.3 合成したゼオライトの SEM 写真

- 1) T. Tago, et al., *Chem. Lett.*, **33**, 1040 (2004)
- 2) T. Tago, et al., *J. Nanosci. Nanotechnol.*, **9**, 612 (2009)
- 3) T. Tago, et al., *Top. Catal.*, **52**, 865 (2009)

*多湖輝興 FAX: 011-706-6552 E-mail: tago@eng.hokudai.ac.jp