

# 機能発現工学

中澤 直人

濃厚シリケート溶液から出発するゼオライト合成法の  
開発と新規ゼオライト合成

Development of synthetic method starting from concentrated  
silicate solution and synthesis of novel zeolite

ゼオライトは結晶性アルミノシリケートであり、触媒や吸着剤、イオン交換剤などとして工業的に幅広く用いられている。細孔構造を決めるゼオライト骨格とそのSi/Al組成がゼオライトの応用特性を決めるうえで重要となる。本研究では濃厚シリケート溶液を用いた新しい合成法またはゼオライト前駆体を原料として用いた合成法に関して中心に検討し、新規ゼオライトを得ることを目的とした。第1章の「緒言」では当該分野に関するこれまでの研究背景とその課題を示し、本研究の目的・意義について論じた。第2章の「新規\*STO型ゼオライトの開発」では大細孔ゼオライトである\*STO型ゼオライトを、OSDAとして trimethyl((-)-*cis*-myrtanyl)ammonium (TMMA<sup>+</sup>)、種結晶としてオールシリカ\*BEA型ゼオライトを使い、これを得ることに初めて成功した。第3章「高シリカSSZ-39の直接合成」では、AEI骨格を有するSSZ-39ゼオライトがSi/Al比が7から9という限られた組成でしかこれまでに結晶化しなかったが、濃厚シリケートを出発とする合成法を開発し、Si/Al比が16のSSZ-39の直接合成に初めて成功した。第4章「TEBOP<sup>2+</sup>を用いた中シリカAFX型ゼオライトの合成」ではN,N,N',N'-tetraethylbicyclo[2.2.2.]oct-7-ene-2,3:5,6-dipyroliidinium (TEBOP<sup>2+</sup>) というこれまでAFX型ゼオライトの合成には使われてこなかったOSDAを用いてSi/Al比が5~8のAFX型ゼオライトの直接合成に初めて成功した。得られたゼオライトはSSZ-16と比べて高い結晶化度を有し、イオン交換容量と水熱安定性を両立する。第5章「Me<sub>2</sub>Pr<sub>2</sub>N<sup>+</sup>を用いた新規骨格ゼオライトYNU-5の合成」では濃厚シリケートから出発し、dimethyldipropylammonium (Me<sub>2</sub>Pr<sub>2</sub>N<sup>+</sup>) をOSDAとして用い、FAU原料をAl源として用いて新規骨格多次元アルミノシリケートゼオライトであるYNU-5の合成に成功した。2018年5月にIZA (International Zeolite Association) によりYFIという骨格コードが与えられた。本ゼオライトは安価で単純な構造を持ったOSDAから得られた大細孔アルミノシリケートという点で特筆に値する。合成混合液の含水量により結晶化するゼオライトが劇的に変化し、水が多い系から順にMFI、YFI、MSE、\*BEAがそれぞれ結晶化し、この順に骨格密度が高くなる。これはOSDAと液相中のシリケート種の相互作用の度合いを合成系の濃度によって制御できたことを示唆している。