

Title	ベータゼオライトのリアルミネーション挙動に及ぼす pHの影響
Author(s)	水野, 龍一郎
Citation	
Issue Date	2001-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2771
Rights	
Description	Supervisor:佐野 庸治, 材料科学研究科, 修士

ベータゼオライトのリアルミネーション挙動に及ぼす pH の影響

水野 龍一郎 (佐野研究室)

【緒言】 ゼオライトの物理的・化学的性質の制御という観点から脱アルミニウム、アルミネーションおよびリアルミネーション挙動が種々のゼオライトについて検討されている。しかし、これまで報告されてきたアルミネーションおよびリアルミネーションの多くは、水酸化ナトリウム等のアルカリ水溶液を用いた方法であるため、ゼオライト構造の破壊が指摘されてきた。当研究室では、熱あるいはスチームにより脱アルミニウム処理した MFI 型ゼオライトを HCl 水溶液を用いて処理すると、骨格構造外アルミニウム種の一部がゼオライト骨格構造中へ再挿入 (リアルミネーション) することを明らかにした。本研究では、ベータゼオライト (BEA) のリアルミネーション挙動に及ぼす pH の影響について検討した。

【実験】 BEA (東ソー製、Si/Al: 21、BET 比表面積: $625 \text{ m}^2/\text{g}$ 、細孔容量: $0.27 \text{ cm}^3/\text{g}$) の脱アルミニウムは、ゼオライト 5 g を 8M HCl 水溶液 20 g を用いて 80 で 2 h 処理することにより行った。酸処理後、このスラリー溶液に 2M NaOH 水溶液を加え pH を調整した後 80 で 0.5 h 加熱攪拌した。生成した固形物はろ過後蒸留水で十分洗浄し、120 で乾燥した。得られた生成物のキャラクタリゼーションは、XRD、XRF、FT-IR、 ^{27}Al MAS NMR、 N_2 吸着およびクメン分解反応により行った。

【結果および考察】 種々の pH で得られた生成物の XRD パターンを Fig.1 に示す。比較のため、Parent BEA および 8M HCl 水溶液で脱アルミニウム処理した後の BEA の XRD パターンも併せて示す。いずれの XRD パターンも Parent BEA のそれと一致し、それ以外のピークは観察されず、BEA の結晶構造は保持されていた。なお、pH が 7 で得られた BEA のピーク強度は Parent BEA に比べて小さく、結晶構造の一部破壊が示唆された。このことは、pH 7 で得られた BEA の BET 比表面積 ($426 \text{ m}^2/\text{g}$) および細孔容量 ($0.20 \text{ cm}^3/\text{g}$) が Parent BEA と比べて小さいことと一致する。Fig.2 に種々の BEA ゼオライトの ^{27}Al MAS NMR スペクトルを示す。いずれのスペクトルにおいても 54 ppm 付近にゼオライト骨格構造中の 4 配位アルミニウム種に基づくピークのみが観察された。そのピーク強度は pH の増加とともに増大し pH 5 で Parent BEA とほぼ同じになった。なお、pH 7 で得られた BEA ではピーク幅の増大およびピーク強度の減少が観察された。pH 5 で得られた BEA の IR スペクトルにおいて架橋型水酸基 $\text{Si}(\text{OH})\text{Al}$ に基づくピーク強度が Parent BEA とほ

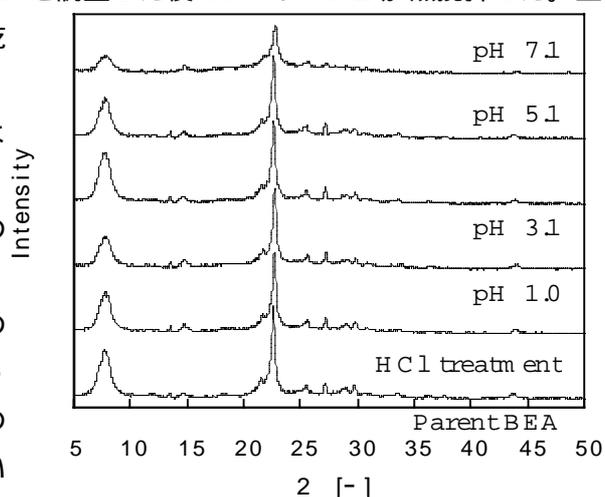


Fig.1 XRD patterns of various BEA zeolites.

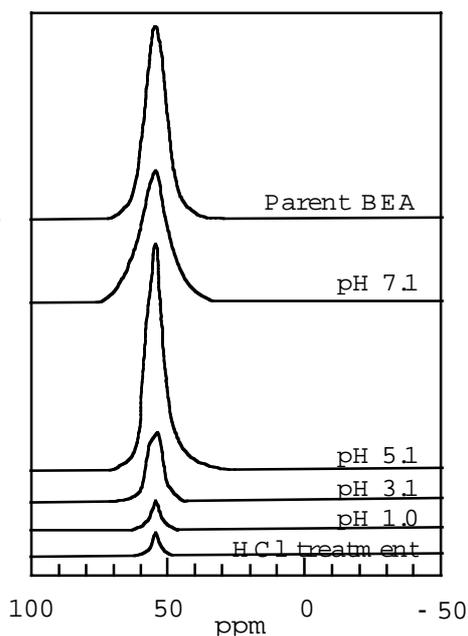


Fig.2 ^{27}Al MAS NMR spectra of various BEA zeolites.

ば同じであったことも考慮すれば、以上の結果は HCl 処理により生じた骨格構造外アルミニウム種が溶液の pH を調整することにより骨格構造に容易に再挿入されることを示している。

【Keywords】 BEA、リアルミネーション、pH 調整