

## A12 *b* 軸配向シリカライト - 1 膜の合成における原料混合液調製条件の影響

(名古屋大学) ○杉下友亮・中村仁・鳴瀧彩絵・大槻主税

E-mail: [ayae@chembio.nagoya-u.ac.jp](mailto:ayae@chembio.nagoya-u.ac.jp)

【緒言】 純シリカ MFI 型ゼオライトであるシリカライト - 1 は、高い疎水性を示し *b* 軸方向に直線状の細孔を有する。高度に *b* 軸配向したシリカライト - 1 の薄膜は、芳香族炭化水素の分離に適するため、その簡便な合成法が望まれている。本研究では、*b* 軸が基板に対して垂直に配向したシリカライト - 1 の薄膜を、原料混合物を石英基板上にコーティングして水蒸気処理するプロセスで作製した。原料混合物の熟成時間や、シリカ源の種類が、膜の配向性や形態に与える影響を調べた。

【実験】 シリカ源としてテトラエチルオルトシリケート (TEOS) を用いて、TEOS と水酸化テトラプロピルアンモニウム (TPAOH) 水溶液を、モル比が  $\text{TEOS:TPAOH:H}_2\text{O} = 1:0.32:2.7$  となるように混合した。一方、コイダルシリカ (CS) をシリカ源として、モル比が  $\text{SiO}_2\text{:TPAOH:H}_2\text{O} = 1:0.32:5.19$  となるように調製した。これらのシリカ源の溶液を 0, 15 分または 60 分間熟成した後、石英ガラスの基板にスピコートした。この試料をオートクレーブ中で水蒸気処理した。試料の結晶相を X 線回折 (XRD) により同定し、形態を電界放射型走査電子顕微鏡 (FE-SEM) で観察した。

【結果と考察】 シリカ源として TEOS を用いた場合、XRD により原料混合物を熟成しない (0 分) 試料では、シリカライト - 1 の (0*k*0) 面に由来する回折線のみが検出され、15 分以上熟成した試料では、(0*k*0) 面以外に由来する回折線も検出された。TEOS を用いた場合では、FE-SEM によって、熟成しない試料 (Figure 1A) では、1 mm<sup>2</sup> にわたって平滑な表面が観察され、15 分以上熟成すると、300 nm 程度の結晶の凝集体が観察された。シリカ源として CS を用いた場合には、熟成していない試料および 15 分間熟成した試料において、(0*k*0) 面に由来する回折線のみが検出され、60 分間熟成した試料で、(0*k*0) 面に由来する回折線に加えて (501) 面に由来する回折線が検出された。FE-SEM によって、熟成を行っていない試料 (Figure 1B) および 15 分間熟成した試料では、シリカライト - 1 に特有のコフィン型の結晶を含む平滑な表面が観察され、60 分間熟成するとコフィン型の結晶と双晶を含む平滑な表面が観察された。以上より、シリカ源に TEOS, CS のどちらを用いても、原料混合物の熟成時間が短い場合に、高度に *b* 軸配向したシリカライト - 1 薄膜が得られた。熟成時間が短い原料混合物では、水蒸気処理する際に TEOS の加水分解、または CS の溶解が律速となり、急激な核形成が抑制され、高度に配向したシリカライト - 1 が得られたと考えられる。

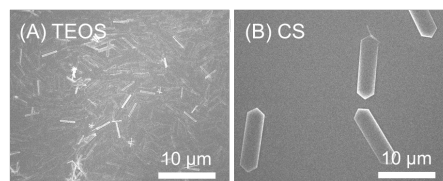


Figure 1. FE-SEM images of the surface of silicalite-1 film synthesized from reaction mixture containing (A) TEOS and (B) CS without aging.