

学位論文要旨 Dissertation Abstract

氏名： 久門 麻実
Name

学位論文題目： 鉄含有ゼオライトの合成と特性評価に関する研究
Title of Dissertation

学位論文要旨：
Dissertation Abstract

ゼオライトは多孔質のアルミノケイ酸塩で、3次元網目状の骨格構造をもつ。ゼオライトの骨格は負に帯電しており、この性質は骨格を構成する四面体 SiO_4 と AlO_4 の同形置換に由来する。ゼオライトの骨格内外に遷移金属陽イオンを導入した遷移金属含有ゼオライトは、ゼオライトの分子ふるい作用と遷移金属由来の触媒作用及び吸着作用などを組み合わせた新規材料として期待され、様々な研究が行われている。

本研究ではゼオライトの骨格内外に鉄(Fe)イオンを導入したFe担持ゼオライトおよびFe置換ゼオライトの合成法について検討した。Fe担持ゼオライトに保持されたFeイオンは NO_x 還元作用、ヒ酸イオンやリン酸イオンなどの陰イオンに対する吸着作用などをもつ。また、Fe置換ゼオライトは陽イオン交換作用をもち、骨格構造や触媒作用の変化が期待される。Fe含有ゼオライトの合成において課題となるのは、ゼオライトへのFeイオンの導入過程におけるFeイオン形態の制御である。Fe担持ゼオライトの合成において、一般的な合成法である水溶液中でのイオン交換法では、ゼオライトとの混合に伴うpHの上昇によりFeイオンの加水分解反応が促進される。そのため、特に陽イオン交換容量(CEC)の高いゼオライトでは、保持されるFeイオンの中にゼオライト粒子表面に沈着した Fe_2O_3 粒子が含まれる傾向が強い。Fe置換ゼオライトの合成においては、ゼオライト合成はアルカリ条件で行われるため、geothiteなどの水酸化鉄物質が形成されやすい。これらの課題を解決する手法として、クエン酸イオンやシュウ酸イオンによりキレート化したFeイオンを用いることで、Feイオンの加水分解反応を抑制し、isolated FeイオンをCEC値の高いゼオライトに導入することを試みた。

Fe担持ゼオライトの合成では、植物へのFeの供給としての利用することを目的として、Na-P1ゼオライトに塩化鉄(III)溶液とクエン酸鉄(III)溶液を用いてFe担持Na-P1ゼオライトを調製し、保持Feの形態と土壤中における放出性を調べた。塩化鉄(III)溶液を用いた生成物(FeChl-Z)とクエン酸鉄(III)溶液を用いた生成物(FeCit-Z)の保持Fe量はそれぞれ 199 mmol kg^{-1} と 225 mmol kg^{-1} だった。FeChl-Zがoligomeric Feや Fe_2O_3 粒子を多く含むのに対して、FeCit-Zでは主に無機のisolated Feやoligomeric FeをNa-P1細孔内外に含んだ。保持Fe量に対するイオン交換性鉄量はFeCit-Zで68%であり、FeChl-Zの17%よりも多かった。異なる鉄溶液を用いて保持されたFeの異なる形態は、Fe担持ゼオライトのFeの放出性に影響を与えること

を示した。

Fe置換ゼオライトの合成は、Fe含有量の多いFe置換P型ゼオライトの調製を目的とし、水熱合成法により短時間での合成を試みた。反応ゲル中のFe/(Al+Fe)モル比0~0.25、反応温度170 °C、反応時間24時間で得られた生成物はP型ゼオライト構造をもち、最大鉄含有量は0.90 mmol g⁻¹だった。得られた全ての生成物がCEC値300 mol g⁻¹以上をもち、この値は生成物の(Al+Fe)含有量とほぼ一致した。分光分析及び熱分析における生成物中のFe形態の評価は、骨格内に鉄が導入されていることを示唆した。これらの結果から、鉄置換Na-P1ゼオライトを合成に成功したと結論付けた。