



層状ケイ酸塩マガディアイトの構造解析

富中 悟史

国立研究開発法人物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクトニクス研究拠点

キーワード：層状ケイ酸塩、X線回折、水熱合成法

1. 背景と研究目的

層状ケイ酸、特にマガディアイトの構造解析に X 線回折 (XRD) と X 線二体分布関数 (XPDF) を用いて解析を行ってきた¹⁾。これまでの X 線構造解析の結果から、マガディアイトには層間以外に層内に電子密度が低い部分が存在することが分かり、細孔分布測定などを含めて考え、マイクロチャンネルが層内に存在するモデルを提唱してきた。その細孔はマガディアイトが生成する際に存在する Na イオンが鑄型となり、ゼオライトの様にマイクロ孔が形成されていると考えられるが、X 線散乱因子では H₂O と Na イオンの区別が付かないため、乱れを含む現状の材料では限界がある。そこで、構造モデルを意識した上で合成条件を精緻に制御することで、構造解析に適したマガディアイト結晶を得ることを目的とし、水熱合成を行い、試料を X 線回折で評価した。

2. 実験内容

強アルカリ溶液をマイクロ波で加熱し、圧力と温度をモニターして合成を行った。得られた試料は洗浄後、結晶水を失わないようにエタノールでリンス後に室温で真空乾燥を行った。粉末試料をリンデマンガラスのキャピラリー (0.5 mm φ) に封入し、あいち放射光 BL5S2 で粉末回折実験 (9.54 keV) を行った。標準試料として同径のキャピラリーに封入した Si を用いて、リートベルト解析の標準とした。また、天然のマガディアイト試料 (米国カリフォルニアの Trinity County より Wisconsin-Madison 大学の Prof. S. W. Bailey が収集したものを Prof. H. Xu より譲り受けたもの) も測定し、比較を行った。

3. 結果および考察

XRD パターンの比較から、ある条件での水熱合成で結晶性の良好なマガディアイトは得られたが、天然物と比較するとピーク強度比に差が見られた。また、結晶性も天然物の方がはるかに良いことが分かった。一方で、合成品に後処理を加えることで、Fig. 1 に示すように天然物と類似の強度比を有する状態に変化することが可能であることが分かった。処理の詳細については論文にまとめるつもりだが、天然鉱物のマガディアイトの生成メカニズムや構造の詳細に迫るカギと考えている。これまでとは比較にならないほど天然物に類似したマガディアイトを生成することは可能になったが、更なる結晶化条件の検討や構造解析を行う予定である。

4. 参考文献

1. Ide, Y.; Tominaka, S.; Kono, H.; Ram, R.; Machida, A.; Tsunoji, N., Zeolitic intralayer microchannels of magadiite, a natural layered silicate, to boost green organic synthesis. Chem Sci 2018, 9 (46), 8637–8643.

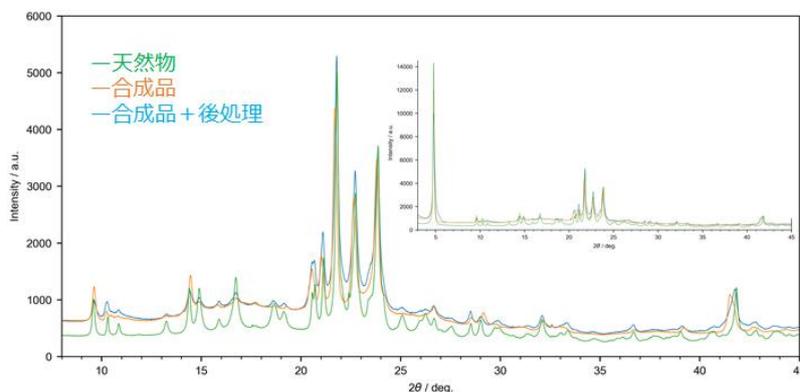


Fig.1 Comparison of XRD patterns for a synthetic magadiite and a natural magadiite.