

大気中固相反応法による Na 型フッ素四ケイ素雲母の合成

(信州大院総合理工¹・信州大工²) ○岡田 凜太郎¹・山口 朋浩¹・樽田 誠一²

Synthesis of Na-fluorotetrasilicicmica by a solid-state reaction in air (¹*Graduate School of Engineering, Shinshu University*, ²*Faculty of Engineering, Shinshu University*) ○Rintaro Okada,¹ Tomohiro Yamaguchi,² Seiichi Taruta²

Na-fluorotetrasilicicmica ($\text{NaMg}_{2.5}\text{Si}_4\text{O}_{10}\text{F}_2$, Na-TSM) was synthesized from the raw mixture corresponding to the composition of Na-TSM, as well as from raw batches containing small amounts of NaCl in addition to the former mixture, by calcination at temperatures between 800°C to 950°C in air. The raw batches containing NaCl led to the promotion of mica formation and the suppression of impurity deposition. NaCl in the raw batches most likely formed liquid phase during the calcination to promote mica formation. The use of the raw bathes containing Na_2SiF_6 as a Na source, instead of NaF, was also investigated.

Keywords : *Na-fluorotetrasilicicmica; sodium hexafluorosilicate; solid-state reaction; layer silicate; flux*

Na 型フッ素四ケイ素雲母 ($\text{NaMg}_{2.5}\text{Si}_4\text{O}_{10}\text{F}_2$, Na-TSM) は、優れた膨潤能やイオン交換能を有する合成雲母である。一般に、Na-TSM はその化学量論組成に一致する原料混合物を用いて密封条件下での熔融法によって合成される。一方で、密封を必要としない大気中での固相反応によっても Na-TSM の合成は可能と考えられる。そこで本研究では、大気中での固相反応法による Na-TSM の合成を目的とし、原料に少量の NaCl を添加することや Na 源として Na_2SiF_6 を用いることを検討した。

Na-TSM の組成に一致する原料混合物 (NaF , MgF_2 , MgO , SiO_2)、またはそれに少量の NaCl を添加した原料混合物を、一軸加圧成形したのちに大気中にて 800°C~950°C で 0~2 h 焼成し、Na-TSM 試料を得た。NaCl を用いて得られた試料については、蒸留水で洗浄した。各 Na-TSM 試料について、XRD および SEM 等により分析・評価した。また、NaF に代替して Na_2SiF_6 を用いる系についても同様に試料の作製と分析を行った。

NaCl を含有する原料混合物を用いた場合、NaCl を添加しない場合と比較して、Na-TSM 結晶の生成が促進され、不純物の共生が抑制された。これは、焼成過程において NaCl が液相を形成し、液相を介した物質移動が促進されたことで Na-TSM の核生成頻度が高まったためと考えられる。特に 950°C で焼成した試料において、Na-TSM が単一相に近い状態で得られた。また、添加した NaCl は Na-TSM 試料中に残存し、蒸留水での洗浄により容易に溶解除去することができた。すなわち、NaCl はフラックスとして作用したと考えられる。 Na_2SiF_6 を用いて作製した試料についても同様に、NaCl がフラックスとして作用し、より低温側の 800°C~850°C で Na-TSM が良好に生成した。