# 行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告 計畫名稱:

# 方沸石晶核作用之動力學研究

計畫編號:NSC 88-2116-M-002-021

執行期限:87年8月1日至88年7月31日

主持人:羅煥記

執行機構及單位名稱:台灣大學地質研究所

#### 一、摘要

本實驗用鈉鋁矽酸玻璃 ( $NaAlSi_2O_6$ )為材料,在氫氧化鈉溶液中,進行方沸石晶核作用之動力學研究。實驗的條件為: 0.75M, 0.5M 和 0.25M 氫氧化鈉溶液,固/液比 1/60 和 1/80, 150 , 180 和 210 ,飽和蒸氣壓。

Synthetic glass (NaAlSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>) was used as the starting material to take a kinetic study on the nucleation of analcime in the presence of NaOH solutions. The experiments have been carried out

under the conditions of 0.75 M, 0.5 M and 0.25 M NaOH solutions; solid/liquid ratios of 1/60 and 1/80; 150 , 180 and 210 ; and vapor pressures.

Experimental results show that the amount of nuclei versus time plots manifest a normal distribution curve. The concentration of dissolved glass in the solution increases with time until it attains the maximum where the amount of analcime nuclei reaches its maximum as well. Under high dissolution conditions, the solution concentration will attain its maximum when the dissolution is near complete, and nucleation will occur no more when the solution concentration drops to a steady state. To the solution contrary, the concentration will attain its before maximum complete dissolution, and nucleation will not happen any more when the solution concentration drops to steady state at complete dissolution under slow dissolution conditions.

#### 二、緣由與目的

礦物結晶包括晶核生成與晶體生長兩種作用。結晶動力學的研究,即在探討此兩種作用隨時間的變化情形。Zhdanov與Samulevich(1980)首先提出結晶動力學的定量研究方法(1),近20年的研究成果顯示,在一定條件下,晶核生成量與時間則成直線的關係(1,2,3,4)。但對形成常態分布與直線關係的機制的研究,仍然非常少。

筆者曾提出在沸石的合成 過程中,晶核的生成主要受固體 實驗材料,溶解在反應溶液中的 濃度影響,來解釋晶核作用的機 制(5)。本實驗即以方沸石的合 成為例,驗證前述溶液濃度為控 制晶核作用的主要機制的正確 性。

本研究的目的有二:(一) 為探討控制晶核作用主要的機制,(二)為探討晶核作用與固體 實驗材料溶解作用的關係。

## 三、結果與討論

實驗結果顯示,玻璃的溶解速率隨溫度與氫氧化鈉溶液濃度的增加而增加;當溫度與氫氧化鈉溶液濃度不變時,玻璃溶解速率與方沸石生成速率隨固/液比減少而增加,也隨玻璃粒徑之減少而增加。

合成方沸石的粒徑呈常態 分布的形態。當玻璃溶解較快 時,方沸石的粒徑範圍較大,平均粒徑也較大,而玻璃溶解較慢時,方沸石的粒徑範圍較小,平均粒徑也較小。

方沸石的晶體生長與時間 成直線關係。當玻璃溶解快時, 方沸石的晶體生長速率大,反 之,則小;但在其他條件相同時, 固/液比小者,方沸石的晶體生長 速率也小。

方沸石的晶核生成量隨時間呈常態分布曲線關係。當玻璃溶解快時,晶核生成最大量時,所需時間較短,且在較短時間內,即停止晶核生成。

玻璃成份在溶液中的濃度 隨時間的增加而增加,當溶液濃度最高時,方沸石晶核生成量最大。玻璃溶解快時,在玻璃接足溶解時,溶液濃度定狀態解度下降到穩定狀態解育。 玻璃完全溶解前溶液濃度已下降到穩定狀態,此時 晶核已停止生成。

## 四、成果自評

- (一) 研究內容完全依照 原計畫進行。
- (二) 預期目標已完全達 成。
- (三) 本研究為固體溶解 與晶核生成關係的 首次實驗結果,可 發表於國際優良期

zeolites: Jour. Geol. Soc. China, 37, 335-341.

#### 五、參考文獻

- 1. Zhdanov, S. P. and Samulevich, N. N. (1980) Nucleation and crystal growth of zeolites in crystallining aluminosilicate gels: Proc. 5th Int. Conf. Zeolites, 75-84.
- 2. Chen, W. H., Hu, H. C. and Lee, T. Y. (1993)
  Transient
  crystallization and crystal size distributions of zeolite A: Chem.
  Eng. Sci., 48, 3683-3691.
- 3. Lechert, H. and Kacirek, H. (1993) The kinetics of nucleation of X zeolite: Zeolites, 13, 192-200.
- 4. Lo, H, J., Chen, Y. L. and Song, S. R. (1995) The kinetic study of the crystallization of Na-Ca silicate hydrates under hydrothermal conditions: Jour. Geol. Soc. China, 38, 255-264.
- 5. Lo, H. J. and Song, S. R. (1994) On the nucleation of