

Title	トリメチルアルミニウムを用いたMCM-41へのAIの導入
Author(s)	高木, 宏之
Citation	
Issue Date	2000-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2662
Rights	
Description	Supervisor:佐野 庸治, 材料科学研究科, 修士

トリメチルアルミニウムを用いた MCM-41 への Al の導入

高木 宏之 (佐野研究室)

【緒言】ゼオライトの細孔径を大きく超える均一なメソ孔を有するメソポーラスシリカ MCM-41 の高機能化を目的に、その骨格構造中への各種金属の導入が活発に検討されている。各種金属の導入方法としては、水熱合成時に各種金属源を添加する方法が一般的であるが、この方法では金属源の導入量に限界があり、かつ MCM-41 の構造規則性が低下することが指摘されている。ところで最近、MCM-41 表面に存在するシラノール基との反応を利用して骨格構造中への金属の導入の可能性が指摘されている。本研究では、有機アルミニウム化合物のシラノール基との極めて高い反応性に着目し、トリメチルアルミニウム (TMA) を用いて MCM-41 骨格構造中へのアルミニウムの導入の可能性について検討を行なったので報告する。

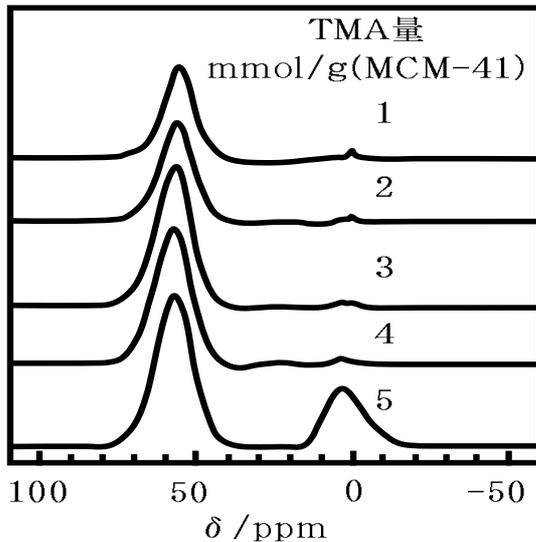


図 1: TMA 処理後の AIMCM-41 の ^{27}Al MAS NMR スペクトル

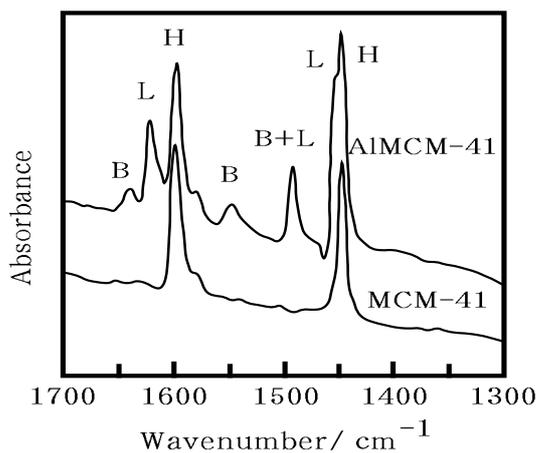


図 2: ピリジン吸着後の AIMCM-41 の FT-IR スペクトル

keywords

MCM-41, シラノール基, トリメチルアルミニウム (TMA)

【実験】MCM-41 は所定の方法に従い水熱合成し、 500°C で焼成した後 280°C で 24 h 真空乾燥した。MCM-41 の TMA 処理は、TMA 含有トルエン溶液 (濃度 1mmol/ml) と MCM-41 を室温にて 48 h 接触させることにより行なった。含浸処理後、溶液部分を除去しトルエンにて数回洗浄、真空乾燥した後所定の温度 ($300\sim 700^\circ\text{C}$) で 5h 焼成した。得られた生成物のキャラクターゼーションは、XRD、XRF、FT-IR、 N_2 吸着、 ^{27}Al MAS NMR、水熱安定性およびクメン分解反応により行なった。

【結果および考察】図 1 には種々の濃度の TMA 溶液で処理することにより得られた AIMCM-41 の ^{27}Al MAS NMR スペクトルを示す。いずれのスペクトルにおいても 54 ppm 付近に 4 配位アルミニウムに基づくピークが観察され、そのピーク強度は TMA 処理量の増加とともに増大した。このことは、TMA 処理による MCM-41 骨格構造中への Al の導入が可能であることを示している。なお、TMA 処理量が 5 mmol の場合にはこのピーク以外に、 0 ppm 付近に 6 配位すなわち骨格構造外アルミニウムに基づくピークが観測された。

次に、導入された Al の存在状態に関する知見を得るために、ピリジン吸着による酸性度の評価を行なった。図 2 には MCM-41 および AIMCM-41 上の吸着ピリジンの FT-IR スペクトルを示す。MCM-41 の場合には、水素結合性ピリジンに基づくピークのみしか観察されなかったが、AIMCM-41 では、 1450 および 1620 cm^{-1} 付近にルイス酸点上に吸着したピリジンに基づくピークが、 1540 および 1640 cm^{-1} 付近にはブレンステッド酸点上に吸着したピリジンに基づくピークがそれぞれ観察された。

以上の結果より、TMA を用いることにより MCM-41 表面に存在するシラノール基を利用して骨格構造中にアルミニウムを容易に導入できることが明らかとなった。