JAIST Repository
https://dspace.jaist.ac.jp/

Title	Post-synthesis法によるAlSBA-15の調製とその触媒性能
Author(s)	角谷，定宣
Citation	
Issue Date	2001-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2778
Rights	
Description	Supervisor:佐野 庸治，材料科学研究科，修士

JAIST
JAPAN
ADVANCED INSTITUTE OF
SCIENCE AND TECHNOLOGY

Japan Advanced Institute of Science and Technology

C20a4

Post-synthesis法によるAlSBA-15の調製とその触媒性能

角谷 定宣 (佐野研究室)

【緒言】 均一な2 nm 以上の1次元メソ細孔を有するメソポーラスシリカは、機能性有機分子の配列や金属ナノワイヤーの合成などのホスト物質、あるいは大きな分子の関与する吸着や触媒反応への利用が期待されている新しいナノ材料である。中でもごく最近合成された、六方構造を有する SBA-15 は、その細孔径が現在報告されているメソポーラスシリカの中で最も大きく、さらに細孔壁が厚く熱安定性の高いメソポーラスシリカである。しかし、これらメソポーラスシリカは、シリカのみからなる構造で固体酸性やイオン交換能を示さないためにその利用範囲が限定されている。水熱合成時に各種金属源を添加する直接合成法により、メソポーラスシリカの高機能化が検討されているが、金属導入による構造規則性や熱安定性の低下等の問題が指摘されている。

ところで、SBA-15 は強酸性条件下で合成を行うため、直接合成法による金属の導入は困難である。そのため、トリメチルアルミニウム(TMA)とメソポーラスシリカ表面に存在するシラノール基との反応により、構造規則性を低下させることなく、メソポーラスシリカ骨格構造中に Alの導入ができる当研究室で見出した post-synthesis 法は有効な方法である。本研究では、SBA-15 の合成条件を詳細に検討するとともに、SBA-15 にイオン交換能や固体酸性を発現させるために、TMA を用いた post-synthesis 法による SBA-15 骨格構造中への Al導入の可能性について検討した。また、得られたAlSBA-15の酸性質および触媒性能を明らかにした。

【実験】 SBA-15 は所定の組成の水性ゲル混合物を様々な条件で水熱処理し、その後823 K で10 h焼成することにより合成した。TMA 処理は553 K で24 h真空排気した SBA-15 に所定量の TMA トルエン溶液(1～5 mmol/g-SBA-15)を室温で 8 h 接触させることにより行った。その後溶液部分を除去し、数回トルエンにて洗浄し、真空乾燥した後 773 K、5 h 焼成した。得られたAlSBA-15 のキャラクタリゼーションは SAXS、N_2吸着、^{27}Al MAS NMR、XRF、FT-IR およびクメン分解反応により行った。

【結果および考察】 SBA-15 を様々な水熱条件下で合成した結果、353 K、20 hにて合成したものが、最も構造規則性が高かったことからTMA処理にはこの条件で合成した SBA-15 を用いた。また、SAXS、N_2吸着、^{27}Al MAS NMR の結果から、TMA 処理により SBA-15 の構造を保持したまま、骨格構造中に Alを導入できることがわかった。なお、1M KCl水溶液を用いてAlSBA-15(SiAl=5.7)をイオン交換した結果、導入された Alの約 21%がイオン交換能を有していることが明らかとなった。そこで、固体酸触媒への応用という観点から得られたAlSBA-15 の酸性質をピリジン吸着により調べた。Fig.1 に、TMA 処理量を1～5 mmol/gと変化させて得られたSiAl比の異なるAlSBA-15上での吸着ピリジンの IR スペクトルを示す。いずれのスペクトルにおいても、1546、1639 cm^{-1}にブレンステッド(B)酸点、および1455、1623 cm^{-1}にルイス(L)酸点に由来するピークが観察され、AlSBA-15にはB酸点およびL酸点が形成していることがわかった。また、SiAl比の減少とともにブレンステッド酸点に由来するピーク強度は増加した。

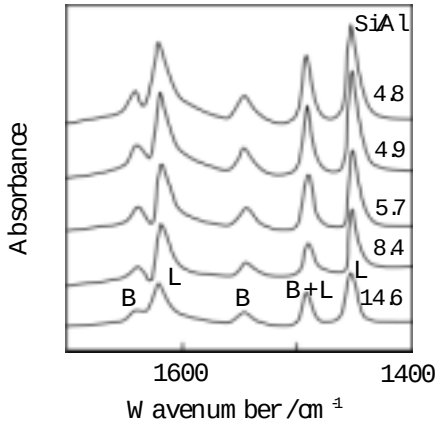

Fig.1 IR spectra of pyridine adsorbed on various AlSBA-15 samples.

次に、AlSBA-15 の B 酸点の触媒性能をモデル反応としてクメン分解反応を行い調べた。Fig.2 に、SiAl比の異なる AlSBA-15 によるクメン分解反応の結果を示す。クメン転化率は SiAl比の減少すなわち Al導入量の増大とともに増加した。

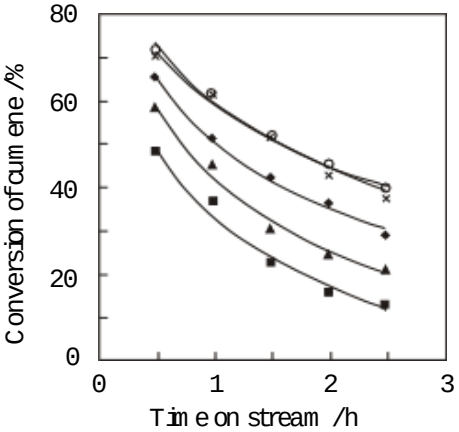

Fig.2 Conversion profiles of cumene on various AlSBA-15 samples.
■：SiAl=14.6, ▲：8.4, ●：5.7, ×：4.9, ○：4.8
W/F=0.2 h, Reaction temp.=623 K

以上の結果より、TMA 処理により SBA-15 の構造規則性を低下させることなく、骨格構造中に Alが導入されること、また形成されたブレンステッド酸点はクメン分解活性を有していることが明らかとなっ

た。
【Keywords】 SBA-15、post-synthesis、トリメチルアルミニウム