

| | |
|--------------|---|
| Title | AI-CDS-1ゼオライトの調製とそのキャラクタリゼーション |
| Author(s) | 飛田, 英士 |
| Citation | |
| Issue Date | 2005-03 |
| Type | Thesis or Dissertation |
| Text version | none |
| URL | http://hdl.handle.net/10119/3167 |
| Rights | |
| Description | Supervisor:佐野 庸治, 材料科学研究科, 修士 |

1. 緒言

当研究室では、脱水重縮合により新規層状珪酸塩 (PLS-1) の層間を架橋させ、新規結晶構造を有するゼオライト CDS-1 (Cylindrical Double Saw-edged zeolite) の合成および構造解析に成功し、その調製条件について検討してきた。¹⁾しかし、CDS-1 ゼオライトはシリカのみから構成されるため、ほとんど触媒能を示さない。そこで本研究では、固体酸性の付与を目的に Al を骨格構造中に導入した Al-CDS-1 ゼオライトの調製方法の検討およびそのキャラクタリゼーションを行ったので報告する。

2. 実験方法

Al-CDS-1 ゼオライトの調製は、以下の2つの方法で行った。(1) Al 含有 PLS-1 (Al-PLS-1) の真空加熱処理: Al-PLS-1 は、Si 源に Cab-O-Sil M5 および Al 源に AlCl_3 を用いて所定のコモ組成に調製した水性ゲル混合物を、所定の温度・時間水熱処理することにより合成した。その後得られた Al-PLS-1 を真空下 (10^{-2} torr) 所定の温度で加熱処理した後、空気流通下 500 で 12 時間焼成した。(2) Post-synthesis 法: CDS-1 ゼオライトを AlCl_3 水溶液に懸濁させ、このスラリー溶液の pH 調整により Al-CDS-1 ゼオライトを調製した。²⁾得られた生成物のキャラクタリゼーションは、XRD, SEM, 窒素吸着, TG, ^{27}Al MAS NMR, ^{29}Si MAS NMR および FT-IR により行った。また、Al-CDS-1 ゼオライトの触媒性能は、クメン、1-ヘキセンのクラッキング反応および 2-プロパノールの脱水反応により評価した。

3. 結果と考察

Fig. 1 に Al-PLS-1 および Al-CDS-1 ゼオライトの ^{29}Si MAS NMR スペクトルを示す。真空加熱処理により、Al-PLS-1 の Q^2 および Q^3 に基づくピーク強度が減少し、 Q^4 に基づくピーク強度が増大した。このことは、Al-PLS-1 層間の SiOH 基の脱水重縮合により架橋が進行し、Al-CDS-1 ゼオライトが形成したことを示している。なお、合成した Al-PLS-1 および Al-CDS-1 ゼオライトの XRD パターンはそれぞれ対応する PLS-1 および CDS-1 ゼオライトと一致した。また、Al-CDS-1 ゼオライトの窒素吸着等温線は型でありミクロ孔の形成が示唆された。BET 比表面積および細孔容積は、それぞれ $195 \text{ m}^2/\text{g}$ および $0.08 \text{ cm}^3/\text{g}$ であった。

次に、Al-CDS-1 ゼオライトの酸性質について検討した。Fig. 2 に CDS-1 および Al-CDS-1 ゼオライト ($\text{Si}/\text{Al}=90$) 上の吸着ピリジン FT-IR スペクトルを示す。CDS-1 ゼオライトには、 1450 および 1620 cm^{-1} 付近に水素結合性ピリジンに基づくピークしか観察されなかったが、Al-CDS-1 ゼオライトにはこのピーク以外に

1540 cm^{-1} 付近にブレンステッド酸点に吸着したピリジンに基づくピークが明瞭に観察された。このことは Al-CDS-1 ゼオライトにはブレンステッド酸点が形成されていることを示している。そこで Al-CDS-1 ゼオライトの触媒性能を 1-ヘキセン、クメンのクラッキング反応および 2-プロパノールの脱水反応により評価した。1-ヘキセンのクラッキング反応および 2-プロパノールの脱水反応は進行したが、クメン分解反応はほとんど起こらなかった。すなわち、Al-CDS-1 ゼオライトの細孔の入口径はクメン分子の大きさ約 7 Å より小さいことを示している。

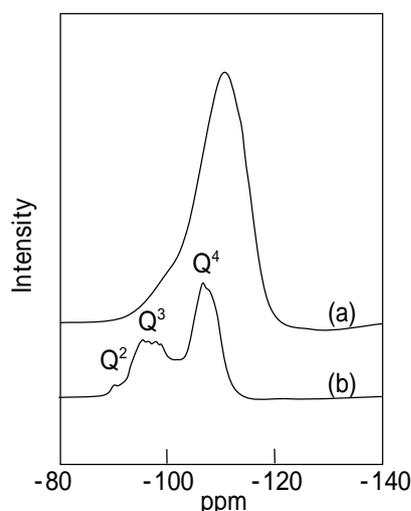


Fig. 1 ^{29}Si MAS NMR spectra of (a) Al-CDS-1 zeolites and (b) Al-PLS-1.

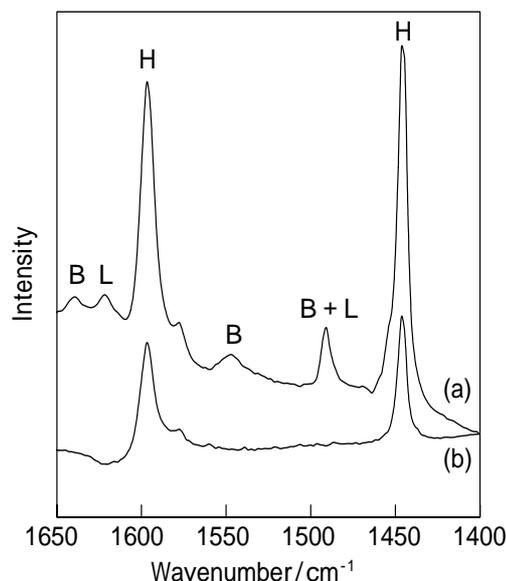


Fig. 2 FT-IR spectra of pyridine adsorbed on (a) Al-CDS-1 and (b) CDS-1 zeolites.

1) T. Ikeda et al., *Angew. Chem., Int. Ed.*, 43, 4892 (2004).

2) Y. Oumi et al., *Microporous Mesoporous Mater.*, 49, 103 (2001).

keywords: 層状珪酸塩, PLS-1, Al-CDS-1 ゼオライト, 酸性質

