

YNU-2 ゼオライト前駆体のポスト処理

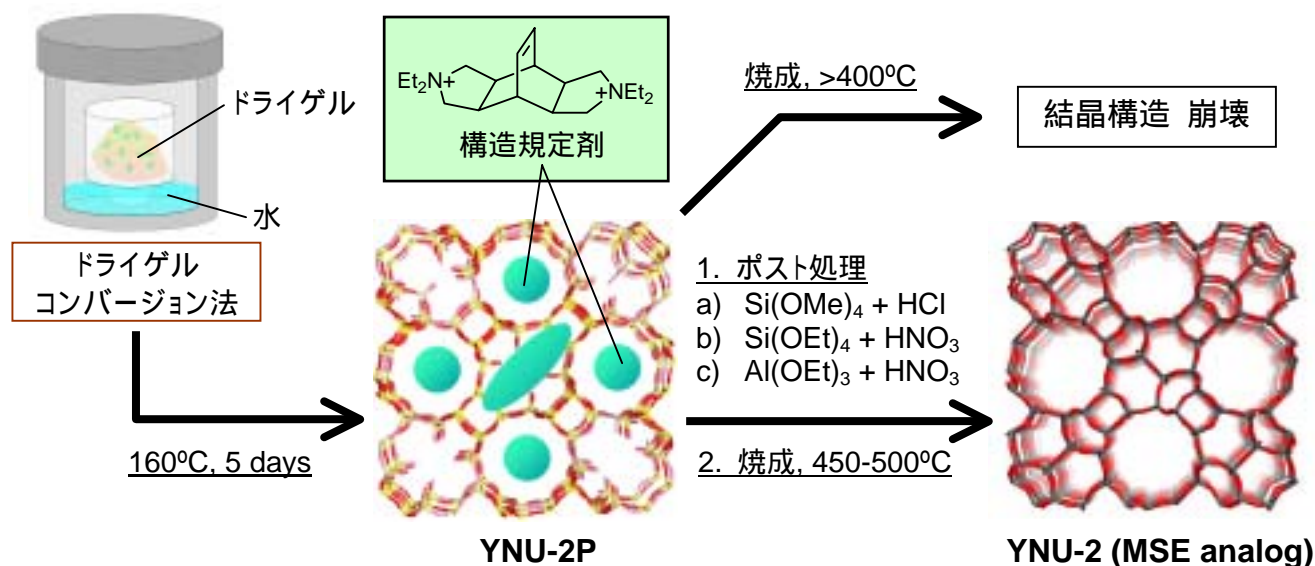
小山啓人*¹・池田卓史*²・稲垣 怜史*¹・横井俊之*³・辰巳敬*³・窪田好浩*¹

*¹ 横浜国立大学大学院 工学府 / 工学研究院

*² 産業総合技術研究所 コンパクト化学プロセス研究センター

*³ 東京工業大学 資源化学研究所

ゼオライト触媒は近年、ファインケミカルズ合成触媒としての応用が期待されており、酸素 12 員環マイクロ孔を含む、新たなゼオライト構造の合成がさかんに行われている。その中で我々は、MCM-68(MSE)アナログである YNU-2 をその前駆体 YNU-2P から調製できることを見出した。^{1,2)}



MCM-68 および YNU-2 は MSE 構造に分類され、酸素 12 員環マイクロ孔と 2 種の 10 員環マイクロ孔が三次元に交わった構造を有する。水熱法で得られる MCM-68 ではその組成が Si/Al=9~12 程度であるのに対して、我々が見出した YNU-2 はドライゲルコンバージョン法を用いて調製するのが特徴であり、生成物には全く Al を含まない。さらに結晶化直後の生成物は MSE 類似構造であったため、YNU-2Pと名付けた。

この YNU-2P は 400 以上で焼成すると結晶構造が崩壊してしまう。この原因を探るため、X 線回折データに基づいて精密構造解析を行ったところ、本来 112 の T サイトから構成される MSE ユニットセルから、YNU-2P では約 13 個の T サイトが欠損していることがわかった。

そこで、Si(OMe)₄ などを用いたシリル化によって、YNU-2P の欠損サイトを埋めるポスト処理を行ったところ、焼成によって構造規定剤を除去しても従来の MCM-68 よりも高い結晶性を示す MSE 構造が得られ、この構造を YNU-2と名付けた。

また Al(OEt)₃ によるポスト処理により Al-YNU-2 が得られることを確認した。このポスト処理を通じて ²⁹Si MAS NMR スペクトルでの Q³/Q⁴ 比が顕著に減少したが、Al-YNU-2 の Al 原子の含有量は非常に少なかった。このことは、外部からの金属源の導入処理時に、骨格 Si のマイグレーションが起きて、MSE 骨格構造を安定化していることを示唆している。

【引用文献】

1) 窪田好浩, 小山啓人, 特願 2006-244056.

2) Y. Koyama, T. Ikeda, T. Tatsumi, Y. Kubota, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **47**, 1042-1046 (2008).