

Spiro-5 型分子前駆体の加水分解/重縮合による多孔性アルミノシリケートの合成

(中大理工¹) ○濱田 月乃¹・疋野 拓也¹・張 浩徹¹

Synthesis of porous aluminosilicates by hydrolysis and condensation of spiro-5 type molecular precursors (¹Faculty of Science and Engineering, Chuo University) ○Tsukino Hamada¹, Takuya Hikino¹, Ho-Chol Chang¹

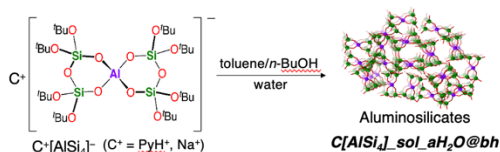
The synthesis of aluminosilicates using molecular precursors (MPs) with defined structures and compositions is a promising method for introducing well-controlled molecular-level functions. In this study, we synthesized porous aluminosilicates through hydrolysis and condensation of spiro-5-type MPs with *tert*-butoxy groups.

Keywords : Aluminosilicate; Molecular precursor; Sol-Gel method

ゼオライトを代表とする機能性アルミノシリケートはこれまでに主に水熱法により合成されてきた。しかし水熱法は、Al および Si 源をそれぞれ用いる点に加え、複数の反応が起こりうることから、組成や構造の制御が困難であった。一方、構造および組成が明確な分子前駆体(Molecular Precursor: MP)を合理的に連結することで、その構造を保持した機能性無機材料の構築が期待できる。これまでに我々は、官能基に *tert*-butoxy 基を持つ Spiro5 型 MP、 $\text{PyH}^+[\text{Al}\{\text{O}((\text{tBuO})_2\text{SiO})_2\}_2]$ の高温での熱処理による多孔性アルミノシリケートの合成を報告した¹⁾。そこで、本研究ではより温和な条件による合成を指向し、 $[\text{C}][\text{Al}\{\text{O}((\text{tBuO})_2\text{SiO})_2\}_2]$ ($\text{C}^+[\text{AlSi}_4]^-$, $\text{C}^+ = \text{PyH}^+, \text{Na}^+$) の末端 *t*-BuO 基の加水分解・重縮合によるアルミノシリケートの合成を試みた。

$\text{C}^+[\text{AlSi}_4]^-$ をトルエンまたは *n*-ブタノールへ溶解し水を添加した後、室温で反応させた (Scheme 1)。反応時間の増加に伴い、不溶性の沈殿が生じたため、これを遠心分離し洗浄後、減圧乾燥し白色粉末 $\text{C}[\text{AlSi}_4]_{\text{sol}}\text{aH}_2\text{O@bh}$ (*sol* = 溶媒、*a* = 水の当量、*b* = 反応時間)を得た。ATR-IR スペクトルより、いずれの試料においても *t*-BuO 基および SiOH 基由来のバンドが存在しないことから、加水分解と重縮合による Si–O–Si 結合の形成が示唆された。また得られた粉末の収量から加水分解・重縮合の反応速度が溶媒により異なること、また、窒素吸脱着測定 (Fig. 1) により多孔性が異なることが明らかになった。当日は、固体 ²⁷Al, ²⁹Si NMR による生成物中の Al 及び Si 周りの環境を考察し、得られた生成物の性質と MP 法の有効性について議論する予定である。

1) 今泉暁, 日本化学会第 104 春季年会, 発表番号 A1444-2vn-02



Scheme 1. Spiro-5 型 MP を用いたアルミノシリケートの合成

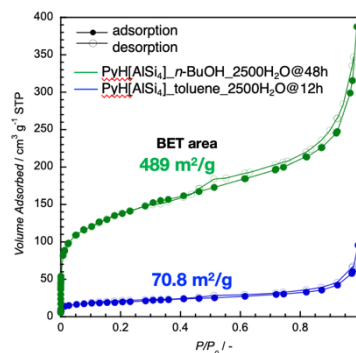


Figure 1. 得られた白色粉末の窒素吸脱着等温線と BET 面積