



岐阜大学機関リポジトリ

Gifu University Institutional Repository

新規ゼオライトの合成とその触媒作用に関する研究

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2008-03-12 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 杉, 義弘 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/20.500.12099/452

本報告書は、平成10-12年度文部省科学研究費補助金(基盤研究(B)(2))(研究課題番号10450303)により行った「新規ゼオライトの合成とその触媒作用に関する研究」についてその成果をまとめたものである。

1. 研究課題 新規ゼオライトの合成とその触媒作用に関する研究

2. 研究課題番号 10450303

3. 研究期間 平成10年度-平成12年度

4. 研究組織
研究代表者 杉 義弘 (岐阜大学工学部教授)
研究分担者 窪田 好浩 (岐阜大学工学部助教授)

5. 研究経費

平成10年度	7,400千円
平成11年度	1,500千円
平成12年度	1,500千円
計	10,400千円

6. 研究成果の要約

1. はじめに

地球環境や資源問題の制約から環境調和性と高機能性が両立した触媒プロセスの確立が不可欠である。このためには、分子レベルで設計できるゼオライト等の立体的に制限された結晶内微空間を利用する環境調和型触媒プロセスの創製が求められている。この様な立体的に制限された微空間を反応場とする形状選択性触媒を創製するために、基質が微空間内でどの様に触媒と作用し反応するかを明らかにする必要がある。

本研究では、上記の課題に取り組むために、多環芳香族化合物のアルキル化反応における活性・選択性と微空間構造の相関を明らかにすると共に、新規ゼオライトの創製を行うことにより触媒技術基盤の確立を試みる。特に、多環芳香族化合物のアルキ

ル化反応においては、選択性を支配する遷移状態の構造を明らかにすると共に、活性劣化の原因である活性点の濃度及び分布を適正化することによる触媒設計指針の確立を中心に研究を行う。また、次世代形状選択的触媒の開発の基礎となる新規ゼオライトの創製を検討する。特に、ゼオライト合成の基礎となる有機テンプレート即ち構造誘起物質と生成するゼオライトの構造相関を明らかにすると共に、新規骨格を有するゼオライトの創製を目指す。本報告は1)ビフェニルのイソプロピル化及び2)テンプレートと生成するゼオライトの相関に関してまとめた。

2. 研究の内容

2.1. ビフェニルのイソプロピル化

(1) 各種ゼオライト触媒の選択性

各種ゼオライトを触媒としたビフェニルのアルキル化の反応結果を表1に示した。12員環ゼオライトであるHY、HM、HLで全く異なる触媒活性及び選択性を示した。HY及びHLでは立体的に最も小さい4-イソプロピルビフェニル(4-IPBP)及び4,4'-ジイソプロピルビフェニル(4,4'-DIPB)の選択率は低く、シリカアルミナ($\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$)とほぼ同等であったが、HMではこれらの異性体を高い選択率で与えた。しかし、10員環を有するHZSM-5は反応活性が低かった。これらのゼオライトは異なった細

Table 1. Isopropylation of biphenyl catalyzed by typical zeolites^a

Catalyst ($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$)	Reaction		Product		Selectivity			Selectivity		
	temperature (°C)	Conversion (%)	composition (%)		of IPBP (%)			of DIPB (%)		
			IPBP	DIPB	2-	3-	4-	4,4'-	3,4'-	3,3'-
HM(23)	180	16	89	11	7	20	74	75	16	2
	250	48	73	27	5	24	71	78	14	2
HY(5.8)	200	76	60	40	36	23	41	5	8	7
	250	83	61	33	7	48	45	11	22	13
HL(6.1)	200	82	54	36	39	18	43	10	8	6
	250	84	53	47	29	25	46	10	13	6
SA(4.3)	180	67	62	38	36	15	49	16	9	5
	250	84	48	39	18	32	50	25	26	8
HZSM-5(50)	300	6	100	0	16	30	54	-	-	-

^a Reaction conditions: biphenyl, 50 mmol; propylene, 100 mmol; solvent, trans-decalin, 20 ml; catalyst, 1 g; period, 4 h.