

# 表面選択的有機修飾したメソポーラスシリカ上の銅触媒の 重合触媒機能と構造解析

## Catalysis and Structure Characterization of Cu Catalyst Supported on Mesoporous Silica with Surface Selective Functionalization

原 賢二<sup>1</sup>、田 旺帝<sup>2</sup>、赤羽紗以子<sup>3</sup>、Jerzy Winech<sup>4</sup>、石戸信広<sup>5</sup>、  
Breina Burgin<sup>6</sup>、Marek Pruski<sup>4, 6</sup>、Victor Lin<sup>4, 6</sup>、福岡淳<sup>1</sup>

<sup>1</sup>北大触媒センター、<sup>2</sup>ICU アーツ・サイエンス研究科、<sup>3</sup>北大理学院、  
<sup>4</sup>アメリカエネルギー省 Ames 研、<sup>5</sup>北大理学部、<sup>6</sup>アイオワ州立大

メソポーラスシリカの規則的なメソ細孔空間内に活性金属種を導入して特殊な触媒反応場として利用する試みが報告されているが、シリカの外表面にも触媒活性点が存在するために厳密な反応場の制御が困難であることが多い。そこで本研究では、このような問題点を解決すべく、メソポーラスシリカの外表面を選択的に有機基で修飾して、内表面選択的な触媒活性種の導入を試みた。界面活性剤を細孔内部に有する as-synthesized MCM-41 をトリメチルシリルトリフラート ( $\text{Me}_3\text{SiOSO}_2\text{CF}_3$ ) で処理することにより、外表面選択的なシリル化を行った(図1)。固体  $^{29}\text{Si}$  NMR などの各種分析種法を用いて有機修飾に関する詳細かつ定量的な構造解析を行った。このようにして得られた外表面選択的にシリル化されたメソポーラスシリカを担体として銅錯体を固定化してフェノール類の酸化重合触媒反応<sup>1</sup>への応用を検討した(図2)。その結果、外表面選択的にシリル化した MCM-41 を担体に用いた触媒が通常の MCM-41 を担体に用いた触媒に比べて、反応の進行度が早く、高い分子量分布を与えた。XAFS 法により固定化された銅種の構造解析を行った。

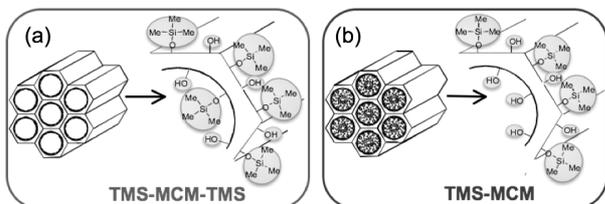


図1 メソポーラスシリカの (a)内外表面シリル化および(b) 外表面選択的シリル化

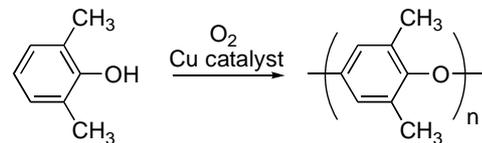


図2 銅担持触媒による2,6-ジメチルフェノールの酸化重合反応