

《解説》

均一メソ孔を有するメソポーラス物質の合成化学

黒田 一幸

早稲田大学理工学部

ゼオライトが有する細孔径を大きく越える均一メソ孔を有する新しい物質群の合成が報告され、15~100 Åにも及ぶ孔径と、メソ孔の規則的な配列等から応用面を含め高い関心を呼んでいる。新規メソポーラス物質合成には界面活性剤の分子集合が重要な役割を果たしている。本解説では、層状ケイ酸塩からの多孔体の合成や Mobil 社の開発した MCM-41 をはじめとする種々のメソポーラス物質の合成、反応機構、異種元素導入の試み、に関する最近の研究動向について主に合成化学の観点から紹介する。

1. はじめに

多孔体はその孔径から、マイクロポア (~20 Å), メソポア (20~500 Å), マクロポア (500 Å~) に大別される。孔径は、細孔径分布、細孔の配列、孔内表面構造等とともに多孔体の性質を決定する重要な因子である。図 1 に多孔体の細孔径分布例を示す¹⁾。ゼオライトの細孔径はマイクロポア域に含まれるので、比較的大きな分子・イオンに対してゼオライトが触媒や分子ふるいとして機能するには限界がある。一方、“porous gel”, “porous glass” のようなアモルファス材料は、大きい孔径も有するが、孔径分布は幅広い。ピラー化粘土等各種層状物質由来の

ピラー化合物は、マイクロポア域とメソポア域に分布をとりやすい。前者は層間とピラー間に由来する細孔であるのに対し、後者は層状微結晶同士がカードハウス構造をとることに由来する不規則なメソポアである。狭い細孔径分布をメソポア域に持つとともに、メソ孔が規則的に配列した多孔体の生成がここ数年で明らかになったことは、今後の材料開発の点からも興味深い。本稿では注目を集めているメソポア域に狭い細孔径分布をもつ多孔体 (均一メソ孔を有するメソポーラス物質) の研究動向を、1994 年迄の文献をもとに、主に合成の観点から概説する。尚本号には、Davis 教授がゼオライト合成とメソポーラス物質合成をまとめて論じた総説が掲載されているので、是非参照願いたい。

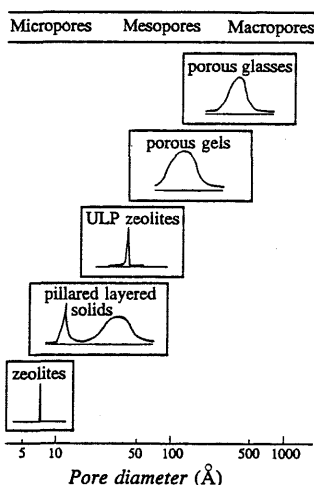


図 1 典型的な多孔質材料の細孔径分布の単純化した模式図¹⁾

2. 層状ケイ酸塩 (カネマイト) からのメソポーラス物質の合成

界面活性剤がシリカ系メソポーラス物質の合成に利用できるのを示したのは 1988 年の筆者らの報告が最初であろう²⁾。筆者らは Lagaly ら³⁾の報告をもとに層状ケイ酸塩の 1 種カネマイト ($\text{NaHSi}_2\text{O}_5 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) と塩化アルキルトリメチルアンモニウム (ATMA , $\text{C}_n\text{H}_{2n+1}(\text{CH}_3)_3\text{NCl}$, $n=12, 14, 16, 18$) との反応生成物とその熱処理物を報告した。 $n=12$ の場合、粉末 XRD 測定から 37 Å, 31 Å に相当する回折線が出現し、31 Å のピークは Lagaly らの報告に一致し、アセトン洗浄で消失することから、層間の縮合を含まないインターカレーションによるものであるとした。反応時間が増すと 37 Å のピーク

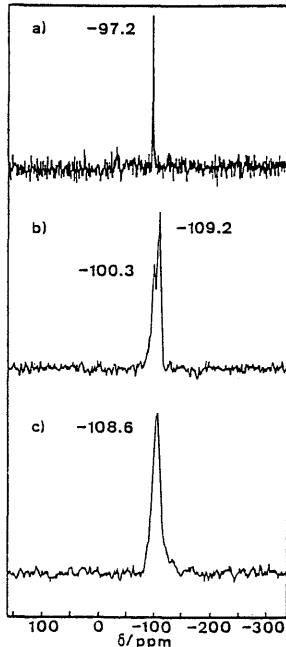


図2 ^{29}Si -MASNMR スペクトル²⁾

a) カネマイト, b) ドデシルトリメチルアンモニウム-カネマイト複合体, c) b)の700℃焼成物

強度が増大し、 31\AA のピークは反応2週間で消失した。図2に示す ^{29}Si -MAS NMRの結果から、カネマイトに存在しない Q^4 環境のSiの存在を示すシグナルが複合体には出現することから、カネマイトはケイ酸塩層が単一層からなるために変形しやすく、隣り合う層同士でシラノール基($\equiv\text{Si-OH}$)の脱水縮合反応が生じたと考察した。

熱処理物のXRDパターンが複合体と類似しており、 ^{29}Si -MAS NMRでは Q^3 シグナルと Q^4 シグナルがオーバーラップし、三次元化したシリカ骨格は熱処理によっても残存した。熱処理物の比表面積は約 $900\text{ m}^2/\text{g}$ を示し、CI法で求めた細孔径分布は狭く、細孔径は反応に用いるATMAの鎖長に応じて図3に示す様に変化した。

さらに複合体をクロロトリメチルシランでトリメチルシリル(TMS)化し、TMS化物の焼成を行った⁴⁾。XRDパターンはほとんど変化せず、比表面積は減少し、細孔径も減少した。

その後^{5,6)}、上記反応条件を再検討し、1 lの0.1 Mヘキサデシルトリメチルアンモニウム(以下C16 TMA)水溶液にカネマイト50 gを分散、70℃・3時間攪拌後に分散液を冷却、HClで分散液のpHを8.5に調整するという操作を行って複合体を合成し、熱

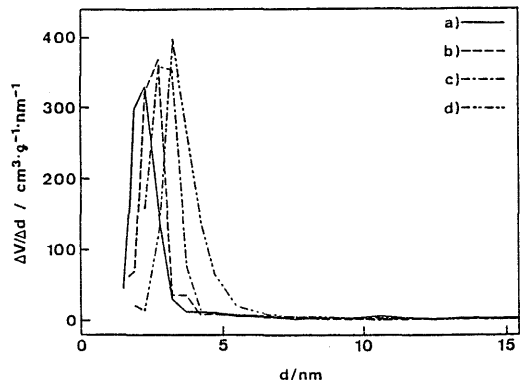


図3 a) ドデシル- b) テトラデシル- c) ヘキサデシル- d) オクタデシル-トリメチルアンモニウム-カネマイト複合体から得られた焼成物の細孔径分布²⁾

処理による有機分の除去を行い多孔体が得られた。XRDから複合体・多孔体ともに、低角度域において六方格子に指数付けできる4本のピークが出現した。TEM観察ではメソ孔が規則正しく配列していることが判明した。700℃、1000℃での熱処理による多孔体の比表面積は $1100\text{ m}^2/\text{g}$ 、 $1070\text{ m}^2/\text{g}$ 、細孔径は 28\AA 、 22\AA であり、均一メソポアを有し、熱的安定性をもつ多孔体であることが示された。

またpH調整の際に生じるシリカ生成の影響を除去するため、70℃・3時間の攪拌後にろ過を行い、得られた固体を純水中に再分散してこの分散液のpHを8.5に調整するという操作も行われている⁶⁾。これによりXRDの低角度域に現れるピークが鋭くなり、 ^{29}Si -MAS NMRで観察される複合体の Q^4 シグナルの強度が弱まった。これら一連の合成と解析から、カネマイトを経由した複合体と多孔体の合成メカニズムについてFolded Sheets Mechanism(図4)が提唱されている^{5,6)}。

Davisら⁷⁾はカネマイトからの多孔体生成に別のメカニズムを示している。彼らは反応温度を80℃、反応時間を4時間から18日まで変化させている。上記と異なるのは、反応終了後にpH調整を行わないこと、反応の際の固液比(カネマイトと分散液の重量比)が異なっている(Lagalyら⁸⁾Yanagisawara(1990)²⁾-1:100、稲垣ら⁵⁾-1:20、Davisら-1:150)ことである。熱処理は空気雰囲気下540℃、10時間行っている。

XRDでは図5に示すように、反応時間が6日以内の複合体には約 30\AA 、 16\AA の面間隔を示す2本

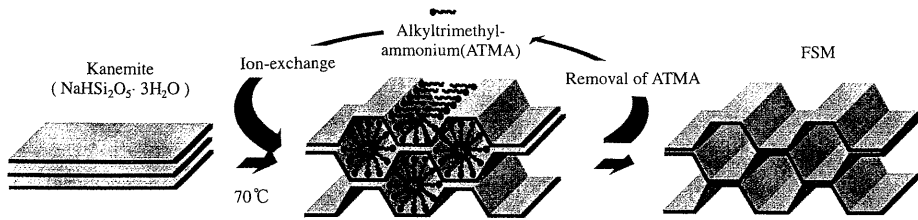


図4 Folded Sheets Mechanismの模式図

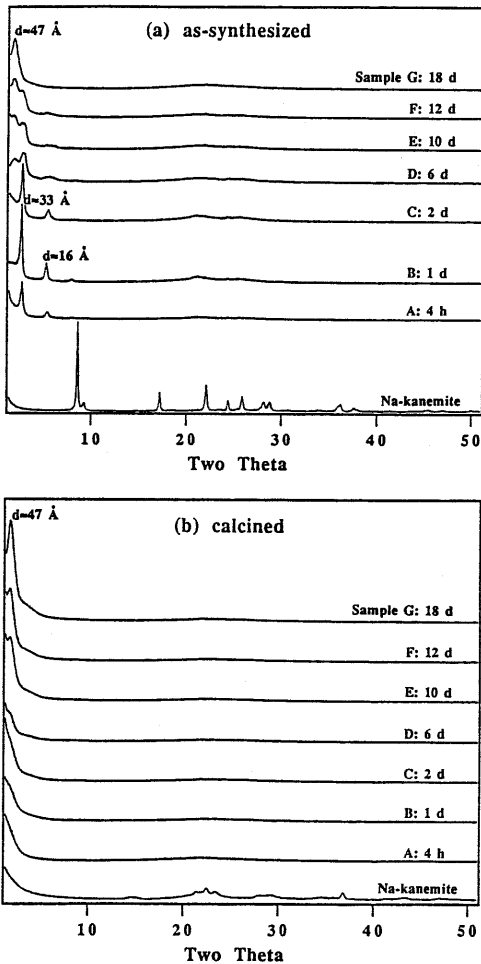


図5 カネマイト-ヘキサデシルトリメチルアンモニウム複合体及びその焼成物の粉末X線回折図⁷⁾

のピークが出現し、Lagalyら、筆者らの既報ともほぼ一致するため、C16TMAカチオンがカネマイト層にインターカレートしたことによる層状構造を示しているとしている。またそれ以上の時間(10日)を経た複合体ではこれら2本のピーク強度が次第に

弱くなり、最終的には消失している。これに対して約47Åの面間隔を示すピークが新たに出て、こちらは次第に明瞭になっている。33Å、16Åのピークは熱処理後に消失するのに対し、この約47Åのピークは残存した。TEMやN₂ガス吸着・脱着、XRD分析の結果から、カネマイトから合成された多孔体はMCM-41に比べて熱安定性及び水熱安定性にすぐれていることも示している。

複合体のXRD結果を見ると1本のブロードなピークしか現れていない。稲垣らの報告との違いについて、彼らは反応の際の固液比が違ふことが影響するとしている。但しpHを上昇させるとカネマイトが溶解し、MCMと同様な反応になると主張している。これらの結果を踏まえて、彼らは次の様な生成メカニズムを提出している。即ちカネマイトの層間Na⁺がC16TMAカチオンと交換してC16TMAカチオンがカネマイト層のピラーとなり、次にケイ酸塩層が分断された形になり、最終的にこの分断された層状シリケートポリアニオンがC16TMAのロッド状ミセルをとり巻き、そこでシラノール基の縮合が起きて三次元的な無機骨格構造が形成されるというものである(本号 Davis 教授総説 FIGURE8 参照)。

以上述べてきたように、層状ポリケイ酸塩の一種であるカネマイトを経由したメソポーラ多孔体は、高い比表面積値と熱安定性を示し、TEMで規則的なメソ孔の存在が確認されている。合成段階のメカニズムについては、今後の更なる解明が必要である。

3. MCM-41を中心とするM41Sメソポーラ物質の開発

1992年 Mobil 社は、シリカ系あるいはシリカアルミナ系メソポーラ物質であるMCM-41を中心とするM41S系物質群の開発を報告した^{8,9)}。典型的な合成例は、26 wt% C16TMACl/OH水溶液とシリカ、アルミナ、テトラメチルアンモニウムイオ

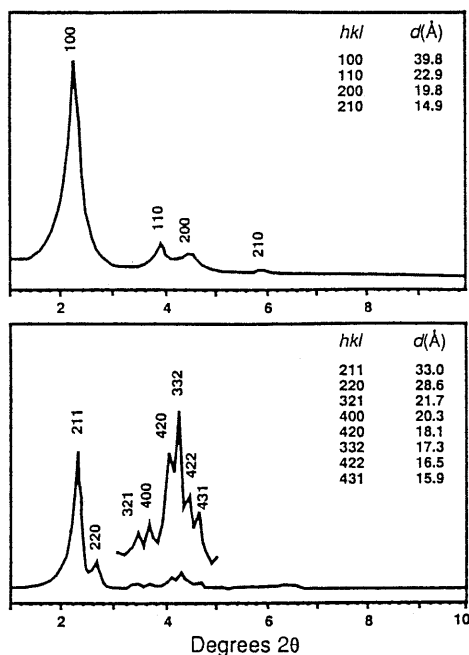


図6 典型的な粉末X線回折図⁸⁾

(上)MCM-41 (下)MCM-48

ンなどを混合し、水熱処理の後にろ過、水で洗浄、風乾を行って複合体を得た後、540℃で窒素雰囲気下・1時間、続いて空気雰囲気下・6時間の熱処理で有機分除去を行いMCM-41等を得ている。

MCM-41のXRDは図6に示すように低角度域に4本の回折線を示し、これはHexagonalの(100)、(110)、(200)、(210)に指数付け可能であった。TEM写真はXRDの結果を反映しており、メソ孔がハニカム状に配列しているのがよくわかる。また粒子外観は六角柱状の結晶形態を示している。MCM-41の比表面積は1040 m²/gと非常に大きな値を示した。またベンゼンの吸着等温線をzeolite Y、アモルファスシリカと比較したところ、等温線の形態は非常に異なったものとなり、メソポアを有する多孔体に特有な毛管凝縮を示した。Ar吸着はHorváth-Kawazoeプロットから求めた細孔径はほぼ40 Åで均一であった。アルキル鎖長の異なるATMA(アルキル鎖長n=8, 9, 10, 12, 14)を用いたり、混合溶液中にメシチレン(1,3,5-トリメチルベンゼン)を加えることによってMCM-41の孔径制御を行っており、MCM-41の孔径はその均一性および配列の規則性を保ったまま100 Åへと拡張が可能であることが示された。

MCM-41の吸着特性について、Frankeら¹⁰⁾はN₂、シクロペンタンの吸着を行い、特にシクロペンタンの吸着・脱着の等温線は毛管凝縮の領域でヒステリシスが生じないことを報告している。Brantonら^{11, 12)}はN₂、Ar、O₂の吸着について報告し、3種類の気体いずれも吸着等温線はIV型を示すことが明らかにされている。N₂の等温線は毛管凝縮の領域でヒステリシスを示さなかった。さらにRathouskyら¹³⁾はAlを導入したMCM-41とTiを導入したMCM-41のN₂吸着について報告し、ヒステリシスを伴わない特異な吸脱着挙動は孔径に依存するとしている。

4. MCM-41 への他元素の導入

4.1 Alの導入

MCM-41へのAlの導入はMobil社の報告以外にもAl源によって取り込まれるAlの量が変化することが報告されている^{14, 15)}。コロイダルアルミナをAl源に用いた場合、Alのほとんどが6配位でシリカ骨格の外にあるのに対して、アルミン酸ナトリウム等の場合、有機複合体で4配位と6配位がほぼ1:1であり、焼成した多孔体ではほぼすべてのAlが4配位となっており、シリカ骨格内に取り込まれたとしている。Schmidtら¹⁶⁾もSi:Al=8.5:1という高いAl濃度まで、4配位Alの導入が可能であると報告している。

4.2 Ti, Vの導入

Cormaら^{17, 18)}は(C₂H₅O)₄Tiを用いてMCM-41の骨格内へTiを導入している。UV-Visスペクトルから、TiがMCM-41骨格構造中に導入されたとしている。Frankeら¹⁹⁾も(C₈H₇O)₄Tiを用いて同様にMCM-41へのTiの導入を行っている。Tanevら²⁰⁾は(iso-C₈H₇O)₄Tiと(C₂H₅O)₄Si(1:100)をエタノール、イソプロピルアルコール、ドデシルアミン、塩酸、水と混合し、18時間室温でエージングすることで複合体を得、熱処理を空气中、950℃・4時間で行った(Ti-HMS)。生成物のXRDは明確にHexagonalに指数付けできるものではなかったが38 Åの面間隔を示した。

Reddyら²¹⁾はMCM-41合成の反応溶液に硫酸バナジウムを添加することでMCM-41にVを導入している。得られたV-MCM-41のXRDの面間隔や細孔径に、もとのMCM-41との違いはあまり見られないものの、⁵¹V-MAS-NMRからVの骨格構造中への取り込みを示している。

5. MCM-41の生成メカニズム

5.1 Liquid Crystal Templateメカニズム

MobilのグループはMCM-41合成の報告^{8,9)}の中で、図7の反応スキームを提案している。これは、複合体とC16TMA水溶液の¹³C-NMRスペクトルの比較、ミセル内に可溶化される有機分子(メチレン)の添加による細孔径の拡張、合成時の界面活性剤(C16TMA)/シリケート比(Sur/Si)により相が異なること等が根拠となっている。Sur/Siが1以下の場合にはMCM-41が得られるが、Sur/Siが1~1.5の範囲においては立方晶(Cubic; Ia3d)での指数付けが可能な相(MCM-48), Sur/Siが1.2~2において層状(Lamellar)相, Sur/Siが2ではケイ酸塩8量体([C16TMA]SiO_{2.5})₈)が生じることが示されている。8量体を除けば、これらは基本的に界面活性剤濃度を変化させたときのミセル相の変化と対応しており、ミセルの形態がテンプレートとして働くという考えの裏付けとなっている。

図7のpathway 1は界面活性剤がロッド状ミセルを形成し、それらがHexagonalに集合後ケイ酸アニオンがミセルを取り囲むというものである。pathway 2についてはケイ酸アニオンの添加により界面活性剤イオンがHexagonal状に集合するという考えである。

Davisら^{14,22)}は、pathway 2を支持している。彼らはMCM-41合成の過程を*in situ* ¹⁴N-NMRで観察し、Hexagonal状のミセルにおいて現れるdoubletシグナルはMCM-41合成過程において現れず、ロッド状、あるいは球状ミセルにおいて現れるシグナルのみしか現れないことを明らかにした。詳しくはDavis教授の総説を参照されたい。

5.2 協奏的なテンプレートメカニズム

Stuckyら²³⁾は、MCM-41合成の反応を遅くすることで生成物の変化を調べている。XRDの結果、

面間隔30 ÅのLamellar相が出現した後、面間隔40 ÅのHexagonal相による回折が生じ、この強度が増大し、これと対応するように²⁹Si-MAS NMRスペクトルに現れるQ³・Q⁴シグナルの強度比が時間の経過に伴って変化し、シラノール基の縮合が進むことを示した。これらの結果から、MCM-41合成反応は非常に速い速度で界面活性剤-シリケート相が形成された後、シリケートの縮合が進行すると説明されている。Lamellar構造をもった界面活性剤-シリケート相において、界面活性剤の分子集合とシリケート間の縮合が反応の経過とともに協奏的に起こるためにHexagonal相の複合体が形成されるというメカニズムを提唱している。またTEMで得られた像²⁴⁾がLamellar相からHexagonal相への構造の変化を示していると主張し、このメカニズムを支持する結果であるとしている。

彼ら^{23,25,26)}はこの複合体生成のメカニズムを、無機-有機の界面形成、界面活性剤の自己集合、無機種間の相互作用(縮合、水素結合など)、合成中の溶液の化学ポテンシャルを考慮してさらに検討している。ケイ酸塩と界面活性剤との反応において、温度、界面活性剤濃度、対イオンなど様々な条件が関係しているので、DavisらとStuckyらのメカニズムを同一の基準で議論することはできない。しかし複合体の形成において、界面活性剤が形成する集合体がテンプレートとなっていることは間違いないことから、界面活性剤の自己集合の要因や共存する無機種の構造に対する知見は今後さらに重要となろう。

5.3 協奏的テンプレートメカニズムの拡張

前項で述べた協奏的なテンプレートメカニズムは、Si以外の酸化物、さらにアルキルトリメチルアンモニウム以外の界面活性剤の系へ拡張する試みがなされている。

無機種として、SiをはじめAl, W, Mo, Pbなど

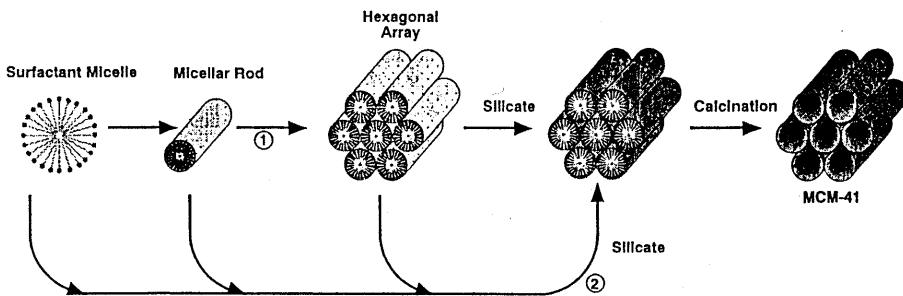


図7 MCM-41の生成スキーム⁹⁾

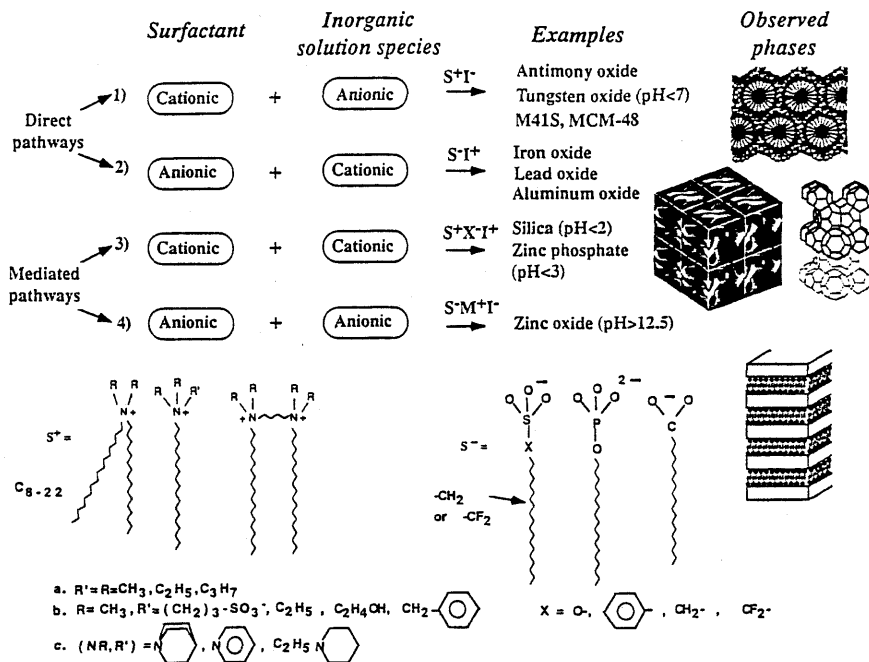


図8 様々な無機有機メソ構造体の生成スキーム²⁷⁾

の酸化物イオンを用い、界面活性剤としてもアンモニウム塩だけでなく、アニオン性の硫酸塩など様々なものを用いて種々の無機-有機複合体が得られている^{27, 28)}(図8)。反応は前項に述べたように、界面活性剤と無機種の相互作用で始まると考えられるため、その組み合わせから得られた複合体の生成方法を4つに分けて考えている。図8の1)および2)は界面活性剤(S)と無機種(I)の電荷が異なるもので、互いの静電引力により反応が開始されるので“Direct pathway”と命名している。MCM-41はこの pathway 1の代表例ということになる。3)および4)は界面活性剤と無機種の電荷が同じ場合で、界面活性剤と無機種の間に対イオン(ハロゲン化物イオン; X⁻, アルカリ金属イオン; M⁺)が介在することで相互作用が起こるものである。これは“Mediated pathway”と命名されている。

図8の pathway 1に従って、例えば無機種のイオンとして $[H_2W_{12}O_{40}]^{6-}$, 界面活性剤にはATMAを用い、Hexagonal相が得られている。しかし複合体のテンプレートの除去については成功していない。また $[Mo_7O_{24}]^{6-}$ と ATMA からの Lamellar相も報告されている。

pathway 2 (S^-I^+)では, Pb^{2+} , Fe^{2+} , 界面活性剤にアルキルスルホン酸塩を用い, Pbの場合Hexa-

gonal相とLamellar相が混在した複合体, Feの場合はHexagonal相, が得られている。どちらについてもテンプレートの除去は成功していない。

pathway 3の方法すなわち酸性条件下(1~3 M HCl or HBr)でカチオン性のケイ酸源を無機種としても複合体を得ている。Lamellar, Hexagonal, Cubic (Pm3n)相の複合体が得られている。同じく pathway 3により, リン酸亜鉛のLamellar相複合体が合成されている。pathway 4によりLamellar状酸化亜鉛あるいはAl酸化物複合体が合成されている。

このようにMCM-41のシリカ複合体・多孔体という枠を越えて, 様々な無機-有機メソ複合体の合成が試みられており, 幅広い分野への展開が期待される。

6. おわりに

本メソポーラス物質は, 既存のマイクロポーラス結晶の応用とは異なる展開も考えるべきであろう。Beinら^{29~31)}はMCM-41の孔中でのアニリン, アクリロニトリルの重合を報告している。ゼオライト中での包接結果とどのように異なるのか, また孔表面に存在するシラノール基をどのように活用すべきか興味深い課題は多い。最近 Mobil 社よりメ

ソポーラス物質のより詳細な結果を含む報告が連続して報告された³²⁻³⁴⁾が、今年に入っても報告が相次いでいる。組成、構造、合成法、メカニズム、異種元素の導入、他のメソ構造体の合成と制御、メソ孔の評価、機能発現、工業的応用にわたる広範囲での今後の研究の更なる進展が望まれる。

本稿作成にあたり、協力して頂いた大学院修士課程久保山剛史君に感謝します。(1995. 2. 24)

文 献

- 1) P. Behrens, *Adv. Mater.*, **5**, 127 (1992).
- 2) T. Yanagisawa, T. Shimizu, K. Kuroda & C. Kato, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **63**, 988 (1990).
- 3) K. Beneke & G. Lagaly, *Am. Miner.*, **62**, 763 (1977).
- 4) T. Yanagisawa, T. Shimizu, K. Kuroda & C. Kato, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **63**, 1535 (1990).
- 5) S. Inagaki, Y. Fukushima & K. Kuroda, *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, **1993**, 680.
- 6) S. Inagaki, Y. Fukushima & K. Kuroda, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, **84**, 125 (1994).
- 7) C.-Y. Chen, S.-Q. Xiao & M. E. Davis, *Microporous Mater.*, preprint.
- 8) C. T. Kresge, M. E. Leonowicz, W. J. Roth, J. C. Vartuli, & J. B. Beck, *Nature*, **359**, 710 (1992).
- 9) J. S. Beck, J. C. Vartuli, W. J. Roth, M. E. Leonowicz, C. T. Kresge, K. D. Schmitt, C. T.-W. Chu, D. H. Olson, E. W. Sheppard, J. B. Higgins, & L. Schlenker, *J. Am. Chem. Soc.*, **114**, 10834 (1992).
- 10) O. Franke, G. Schulz-Ekloff, J. Rathousky, J. Starek & A. Zukal, *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, **1993**, 724.
- 11) P. J. Branton, P. G. Hall, & K. S. W. Sing, *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, **1993**, 1257.
- 12) P. J. Branton, P. G. Hall, K. S. W. Sing, H. Reichert, F. Schuh & K. Unger, *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, **90**, 2965 (1994).
- 13) J. Rathousky, A. Zukal, O. Franke & G. Schulz-Ekloff, *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, **90**, 2821 (1994).
- 14) C.-Y. Chen, H.-X. Li & M. E. Davis, *Microporous Mater.*, **2**, 17 (1993).
- 15) M. Janicke, D. Kumar, G. D. Stucky & B. F. Chmelka, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, **84**, 243 (1994).
- 16) R. Schmidt, D. Akporiaye, M. Stocker & O. H. Ellestad, *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, **1994**, 1493.
- 17) A. Corma, M. T. Navarro, & J. P. Parient, *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, **1994**, 147.
- 18) A. Corma, M. T. Navarro, J. P. Pariente & F. Sanchez, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, **84**, 69 (1994).
- 19) O. Franke, J. Rathousky, G. Schulz-Ekloff, J. Starek & A. Zukal, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, **84**, 77 (1994).
- 20) P. T. Tanev, M. Chibwe & T. J. Pinnavaia, *Nature*, **368**, 321 (1994).
- 21) K. M. Reddy, I. Moudrakovski & A. Sayari, *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, **1994**, 1059.
- 22) C.-Y. Chen, S. L. Burkett, H.-X. Li & M. E. Davis, *Microporous Mater.*, **2**, 27 (1993).
- 23) A. Moonier, F. Schuth, Q. Huo, D. Kumar, D. Margolese, R. S. Maxwell, G. D. Stucky, M. Krishnamurty, P. Petroff, A. Firouzi, M. Janicke & B. F. Chmelka, *Science*, **261**, 1299 (1993).
- 24) V. Alfredsson, M. Keung, A. Moonier, G. D. Stucky, K. K. Unger & F. Schuth, *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, **1994**, 921.
- 25) G. D. Stucky, A. Moonier, F. Schuth, Q. Huo, D. I. Margolese, D. Kumar, M. Krishnamurty, P. Petroff, A. Firouzi, M. Janicke & B. F. Chmelka, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **240**, 187 (1994).
- 26) Q. Huo, D. I. Margolese, U. Ciesla, D. G. Demuth, P. Feng, T. E. Gier, P. Sieger, A. Firouzi, B. F. Chmelka, F. Schuth & G. D. Stucky, *Chem. Mater.*, **6**, 1176 (1994).
- 27) Q. Huo, D. I. Margolese, U. Ciesla, P. Feng, T. E. Gier, P. Sieger, R. Leon, P. M. Petroff, F. Schuth, & G. D. Stucky, *Nature*, **368**, 317 (1994).
- 28) U. Ciesla, D. Demuth, R. Leon, P. Petroff, G. D. Stucky, K. Unger & F. Schuth, *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, **1994**, 1387.
- 29) C.-G. Wu & T. Bein, *Chem. Mater.*, **6**, 1109 (1994).
- 30) C.-G. Wu & T. Bein, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, **84**, 2269 (1994).
- 31) C.-G. Wu & T. Bein, *Science*, **264**, 1757 (1994).
- 32) J. S. Beck, J. C. Vartuli, G. J. Kennedy, C. T. Kresge, W. J. Roth & S. E. Schramm, *Chem. Mater.*, **6**, 1816 (1994).
- 33) J. C. Vartuli, C. T. Kresge, M. E. Leonowicz, A. S. Chu, S. B. McCullen, I. D. Johnson & E. W. Sheppard, *Chem. Mater.*, **6**, 2070 (1994).
- 34) J. C. Vartuli, K. D. Schmitt, C. T. Kresge, W. J. Roth, M. E. Leonowicz, S. B. McCullen, S. D. Hellring, J. S. Beck, J. L. Schlenker, D. H. Olson & E. W. Sheppard, *Chem. Mater.*, **6**, 2317 (1994).

Synthetic Chemistry of Mesoporous Materials with Uniform Mesopores

Kazuyuki KURODA

Department of Applied Chemistry, Waseda University

This review summarizes the recent developments of newly developed highly ordered mesoporous materials. The mesoporous materials derived from a layered polysilicate kanemite and so-called M41S family of mesoporous materials are presented from the viewpoint of synthetic chemistry. Reaction mechanisms, incorporation of various elements into frameworks, and other attempts related to these new materials are reviewed.

Key words: Mesoporous materials, Kanemite, MCM-41, Pore size, Inorganic-organic mesostructures, Surfactant.