

《 解 説 》

アンモニアIRMS-TPD法とDFT（密度汎関数）計算を併用するゼオライトブレンステッド酸性質に関する研究

丹羽 幹, 片田直伸, 鈴木克生

鳥取大学工学部

ゼオライト中のBrønsted酸点の研究におけるわれわれの最近の研究成果をまとめた。アンモニアの昇温脱離（TPD）測定はIRを同時に測定する方法（IRMS-TPD）とすることにより、非常に強力なキャラクタリゼーション手段となることがわかった。なかでも、Brønsted酸点の分布、構造が詳しくわかるようになったのは大きな進歩である。さまざまなゼオライトで得られたBrønsted酸強度（アンモニア吸着熱） ΔH はOHのIRバンド位置と相関性があり、またこれはパラフィン分解反応のターンオーバー数ともよい相関性を示した。これらは、物理化学および触媒化学的に合理的な実験結果である。さらに、密度汎関数（DFT）法により計算したアンモニアの吸着熱はIRMS-TPD実験で得た ΔU 値とよく一致することを認めた。すなわち、アンモニアTPD測定による酸強度 ΔH がはじめて理論的に支持された。このようにして、実験と理論を併用するBrønsted酸点を詳しく研究するための新しい研究方法がえられた。

1. はじめに—これまでのアンモニアTPD法による酸性質測定研究

アンモニアを塩基性分子のプロープとして用いるアンモニア昇温脱離（TPD）法は、固体試料の酸性質を測定する方法としてよく利用されていることは周知のとおりである。しかしアンモニアTPDの物理化学は簡単でなく、操作と解析には慎重な配慮が必要である。この方法を用いる酸性質の測定については、すでに著者らによるいくつかの総説^{1,2)}があるのでそれらを参考にしてもらいたい。著者らの目的は、酸点の量と強度を正確に測定することであり、そこから得られる酸点の特徴を理解し、これを新しい触媒の開発に利用できるようにすることである。酸性質を示す固体の中でも、ゼオライトはきわめて精緻な構造をもち、われわれにもっとも好都合な研究場

を提供している。

ところがこれに反し、アンモニアTPDの酸性質測定方法を否定する意見³⁾が公表されたり、反対にその特徴をまったく承知していないと見受けられる実に簡単な誤りを含む論文が発表されたりすることがある。つまり、この測定方法の評価と利用には研究者による幅の広い分布があり、評価が一定でない特徴がある。

この評価のばらつきの原因となっているのは、おそらく何が測定されているのかが不明確なためであろうと考えられる。実際脱離するアンモニアがどういふ酸点に吸着しているかはTPD実験からはまったくわからない。そのため、酸点構造を適当に推測するか、あるいは別の測定方法とあわせて結論を得るしかない。この不明瞭さは現代のキャラクタリゼーション技術にとって致命的な欠点といえるかもしれない。

これまでの著者らのゼオライト酸性質に関する結論は次の二つの結論に要約される。すなわち、(1) 酸量は骨格内のAl量に等しい、(2) 酸強度は濃度に依存せず、ゼオライトの構造に依存する、である。かなり長い間行ってきた研究の行き着いた結論はこ

受理日：2007年12月21日

〒680-8552 鳥取市湖山町南4-101

鳥取大学工学部物質工学科

e-mail: mikiniwa@chem.tottori-u.ac.jp

のような大変に簡明なものである。これらは、構造と組成が簡単なゼオライト中の酸点に関する結論であるが、世間で一般に使われているゼオライトの多くは異元素を含むか、欠陥を多く持つものがおおく、それらはやや複雑な酸性質を呈する。その研究過程で、アンモニアTPDの限界を実感することがしばしばあり、新しい測定法の開発を迫られることとなった。

2. IRとMSを併用するアンモニアTPDの研究

アンモニアをゼオライトに吸着させ、温度を徐々に上げながら連続的にIRを測定し、吸着種の強度変化を測定することによって吸着種の熱的挙動を測定する方法—IR-TPD測定—はすでに複数の研究例⁴⁾が報告されていた。しかし、IRとMSを同時に測定し、吸着アンモニア種と脱離アンモニアを同時に測定する方法は報告されていなかった。IRが吸着種に関する多くの重要な情報をあたえることはよく知られており、このIRとMSを併用する測定方法にそれほどのオリジナリティーを主張することはできない。しかし、IRの定性に強い特徴とMSの定量性の二つが合わさったときに、非常に興味深い研究が行われることを実感したのはわれわれがおそらく最初である。

当初、われわれの意図したものは、 NH_4^+ と NH_3 吸着種のIR-TPDをMS-TPDと照合することによって、脱離アンモニアの吸着サイトがBrønsted酸点かLewis酸点かを決定することであった。実際、この吸着種の判定はいくつかの実験で利用されている。しかし、欠陥の少ない正確な構造を持つゼオライトを測定したとき、測定された酸点はほとんどBrønsted酸点ばかりであり、Brønsted/Lewis酸点の区別はそれほど興味深いものではなかった。ところが、Brønsted酸点を正確に測定することによって、さらに興味深い実験結果が得られることがわかってきた。それがBrønsted酸点の分布と酸点構造に関する物理化学的事実である。

最初に興味深い事実を観察したのは、モルデナイト酸点に関する研究である⁵⁾。酸型モルデナイトは約 3600 cm^{-1} にOHバンドが観察される。アンモニアを吸着させると、このOHバンドの強度は完全に消失し、昇温してアンモニアが脱離するにともない徐々に強度が回復する。図1はその様子を示したものである。OHバンド位置をよくみると、373 Kで

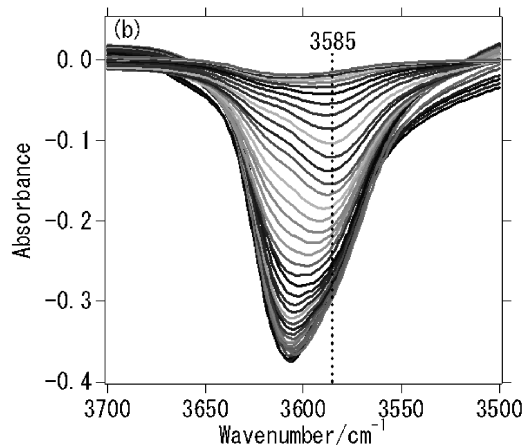


図1 HMのOH領域におけるIR差スペクトル：下から上に、373から773 Kにおける測定

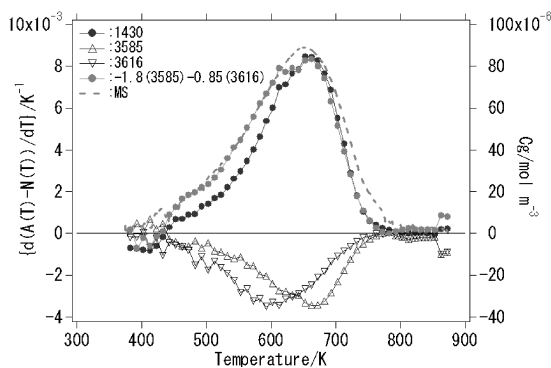


図2 HM上のIRMS-TPD

は 3616 cm^{-1} に見られたものが、温度を上げると徐々に低波数にシフトし、 3585 cm^{-1} に吸収が見られるようになる。測定温度をあげると、IRバンド位置はわずかに低波数にシフトするが、図1はこのシフトを補正した後のものである。図1で温度上昇にともないバンドの位置がシフトするようになるのはOHバンドが二種類ありそれらの強度比が温度によって変わるためである。バンド強度を分割し、温度変化にともなうそれぞれの強度変化を計算し、その温度に対する微分変化を測定温度に対してプロットすることによって、IR-TPDと呼ぶ曲線が得られる。図2のマイナス側の二本の曲線がそれで、二種類のOHに関するIR-TPDである。図は省略するが、アンモニアの吸着によって 1430 cm^{-1} に吸着 NH_4^+

の変角振動が見られる。いうまでもなくこれは Brønsted 酸点上の NH_4^+ であることがわかる。このバンド強度の昇温による変化を測定し、その温度に対する微分変化を計算して、測定温度に対してプロットしたものが図2のプラス側に示されている。さらに、同時に MS によって測定した脱離アンモニアの温度に対する変化 -MS-TPD も図2のプラス側に示したが、 NH_4^+ の IR-TPD とよく一致していることがわかる。二種類の OH に吸着していた NH_4^+ が脱離することによって、三種の IR-TPD と一つの MS-TPD が得られ、これらは相互に関連している。つまり、アンモニアは二種の Brønsted 酸点に吸着しており、そこから脱離したアンモニアを MS で検出している。したがって、ここには二種類の Brønsted 酸点があると結論づけることができる。図は省略するが、OH バンドは異なる吸光度係数をもつので、それを補正することによって二種類の OH の TPD による定量的な変化が得られる。その結果から、以前提案したアンモニア TPD の理論式にしたがって、酸量と酸強度に相当するアンモニア吸着によるエンタルピー変化 (ΔH) を決定することができる。3616 cm^{-1} の OH はモルデナイト 12 員環に位置するものであり、また 3585 cm^{-1} は 8 員環の OH に帰属される。シリカアルミナ比が 15 の酸型モルデナイト (触媒学会参照触媒 JRC-Z-M15 から調製した) についていえば、前者と後者の酸量は、それぞれ、0.42, 0.77 mol kg^{-1} であり、酸強度 ΔH は、147, 155 kJ mol^{-1} と決定された。

このようにして、あたらしい IRMS-TPD 測定では、これまでの TPD とは比較にならないほどの詳しい酸点に関する情報が手に入るようになった。ここにはじめて、酸量、酸強度、構造に関するデータが一度に得られたことになるが、これはこの分野の研究における非常に重要な進歩である。

3. Brønsted 酸点の分布に関する研究

上で述べた特徴をいかすべく、いろいろな酸型ゼオライトの酸点を測定したところ、いくつかの興味深い結論を得ることができた。Brønsted 酸点の分布の点で興味深い結果をあたえるのは、Y ゼオライトとチャバサイトである。ことに Y ゼオライトは触媒活性との相関性についても興味深い結果をあたえ、本研究の特徴が最もよく生かされているので、こ

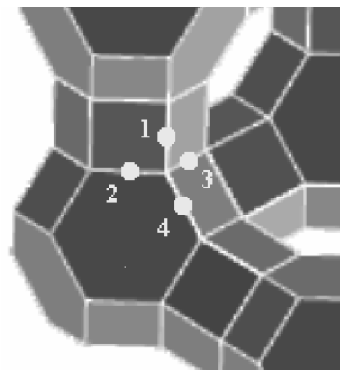


図3 Yゼオライトの構造, 番号1から4は構造の異なるO原子を示す

で紹介したい。

Y ゼオライトは、その構造からは想像できないが、一種類の T サイトしかないのが特徴である。これに四つの酸素が正四面体構造をなして結合しているので、構造的には 4 種類の Brønsted 酸点が存在することとなる。図3に Y ゼオライトの構造と、1 から 4 の番号がつけられた 4 種類の O を示した。Brønsted 酸点 O(1)H は 12 員環のスーパーケージを向いており、O(2)H と O(3)H は、それぞれ 6 員環のソーダライトケージおよび六角プリズム内にあることがわかっている。しかし、中性子回折の測定⁷⁾では O(4)H は見つからなかったとされ、存在しないことになっている。

図4の上部に示したが、通常の IR 測定では、HY には二本の OH がみられ、低波数の OH はソーダライトケージおよび六角プリズム中、また高波数の OH はスーパーケージ中にあると同定されている。これに対し、IRMS-TPD 実験では、図4の下部にある消失した OH の回復過程を示す図に見られるように、二本の OH がそれぞれ二つに分かれ、その結果合計四本の OH が見られるようになる。これをそれぞれ分割し、上で説明したようにして 4 種の IR-TPD を計算し、図5のマイナス側に示した。一方アンモニア吸着種として NH_4^+ と NH_3 が、それぞれ 1500 から 1320 cm^{-1} 、および 1665 cm^{-1} に観測される。 NH_4^+ のバンドは幅広で一本とはいえないので、三本のバンドに分割して解析し、 NH_3 のものとあわせて、これらの IR-TPD を図5のプラス側に示した。また同時に測定した MS-TPD も示している。この図5

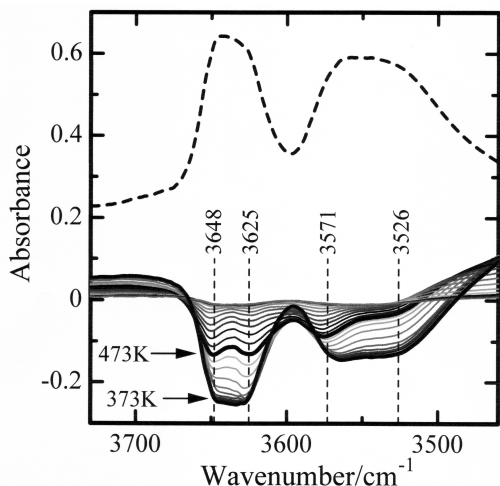


図4 HY上のOH領域におけるIR-TPD：破線は脱気後のReferenceスペクトル

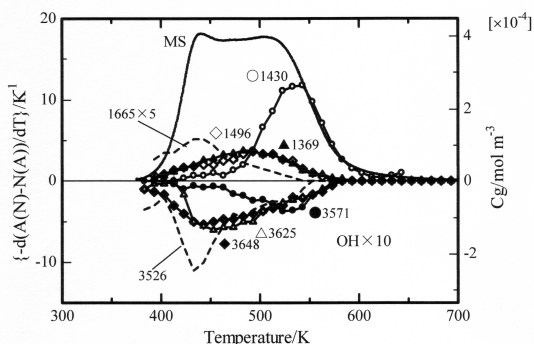


図5 HY上のIRMS-TPD

のIR-TPDは上下が対称になっていないので解析がむずかしいが、吸光度係数の逆数に相当する係数を適当に仮定することによって、強度変化を解析した。はじめに、 NH_4^+ 種の1430, 1369, 1496 cm^{-1} の三種のバンドに対しては、1.0, 3.3, 3.3の係数を、また NH_3 種の1665 cm^{-1} のバンドには19の係数をかけ、それらを合計すると、MS-TPDに一致する。またOHバンドに対しては、3648, 3625, 3571 cm^{-1} のOHに対して、-1.44, -1.5, -6.0の係数をかけて合計すると、これは三種の NH_4^+ のIR-TPDの合計に一致し、また3526 cm^{-1} のOHに-1.6をかけたものは NH_3 のIR-TPDに一致する。最後にTPDの理論式を用いて個々のOHの補正されたIR-TPDを

表1 4種のHYゼオライトOHのバンド位置、酸量、酸強度

バンド位置 cm^{-1}	同定	酸量 mol kg^{-1}	酸強度 ΔH kJ mol^{-1}
3648	O(1)H	0.58	108
3625	O(1' or 4)H	0.57	110
3571	O(2)H	1.1	119
3526	O(3)H	0.80	105

解析することによって、4種類のBrønsted酸OHの酸量と酸強度が決定される(表1)。

非常に煩雑な説明が続いたが、ここで結論をまとめておきたい。Yゼオライトにアンモニアを吸着すると NH_4^+ と NH_3 があらわれ、これらはそれぞれ高温と低温で脱離するアンモニアをあたえる。OHは4種類みられるが、 NH_4^+ 生成に関係しているものはそのうちの3種類で、これまでの研究を参考に同定すると、3648, 3624, 3571 cm^{-1} のOHはそれぞれO(1)H, O(1' or 4)H, O(2)Hである。ここで、O(1' or 4)Hは結論を保留したもので、隣接Alの影響でシフトしたO(1)Hか未確認のO(4)Hのいずれかを示している。3526 cm^{-1} に見られる残りの一つのOHはO(3)Hで NH_3 との相互作用をもち、 NH_4^+ を与えないと考えられるが、これは六角プリズム中の狭い空間にあるためだと考えている。もっとも強い酸点はソーダライトケージ中にあるO(2)Hだが、立体障害のため触媒活性には無縁であろう。表1に示したYゼオライト中の4種OHの酸性質に関するデータはこの方法だけが出すことのできるものであることに注意してもらいたい。この研究では、IRMS-TPD法の特徴と有利さが顕著に示されている。

4. Brønsted酸点の強度とIRバンド位置、および触媒活性との相関性

今まで述べてきたモルデナイトやYゼオライトでは複数のBrønsted酸点があり、その分布がこの方法によってあきらかになる。しかし、このほかのBEA[®]、MFI、それにMWWなどの酸性質も同じ方法で測定したが、明確な酸点の分布が見られない。ここには、構造の異なる多くの種類のBrønsted酸点が存在するのであるが、分布を示すほどのおおきなエネルギーの違いはないのであろう。しかし、多くのゼオライトの酸性質を測定することによって次の

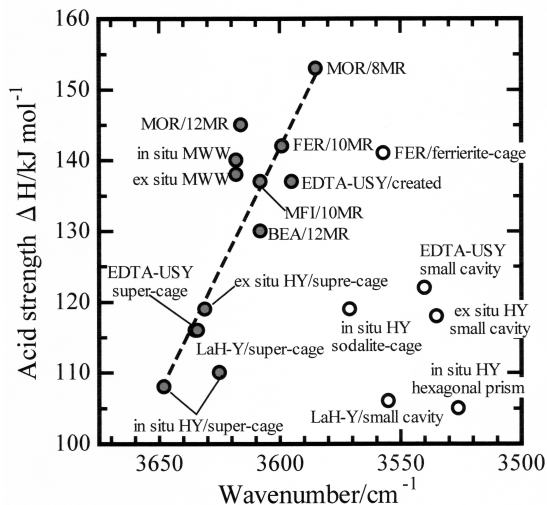


図6 いろいろなゼオライトのBrønsted酸点強度 ΔH とそのOHバンド位置の相関性。黒丸は8-12員環、白丸は6員環内OHを示す

ような重要な知見が得られた。

初めに図6はBrønsted酸点の酸強度 ΔH とOHのIRバンド位置の関係を示したものである⁹⁾。6員環のOHには相関性がないが、8から12員環にあるOHについて両者は大体よい相関性がある。ここには、HY、アルカリ土類イオン交換Yゼオライト、USY、BEA、MFI、MWW、FER、MORなどの代表的なゼオライトの酸性質がプロットされている。OHのIRバンド位置が低波数になるほどOHの結合エネルギーは小さくなり、反対に NH_4^+ の結合エネルギーはおおきくなるので、 ΔH が大きくなると説明できる。したがって、ややばらつきがあるものの、この相関性には物理化学的に確かな根拠がある。プロットのばらつきはアンモニアが二座または三座でゼオライト骨格に吸着するなどの立体構造のばらつきなどが影響しているのであろう。これに対し、6員環内のOHにおいては、Yゼオライト中のO(3)Hで観察されたように、立体障害によって酸強度 ΔH が弱められているか、BEAゼオライトの6員環内で報告されているように¹⁰⁾、水素結合によってOHの距離に変動があり、これにともなってバンド位置が異なるか、のどちらかあるいは両方が影響していると考えられる。図6は測定した ΔH を別の測定で得たパラメータに相関づけたという意味で、高い意義

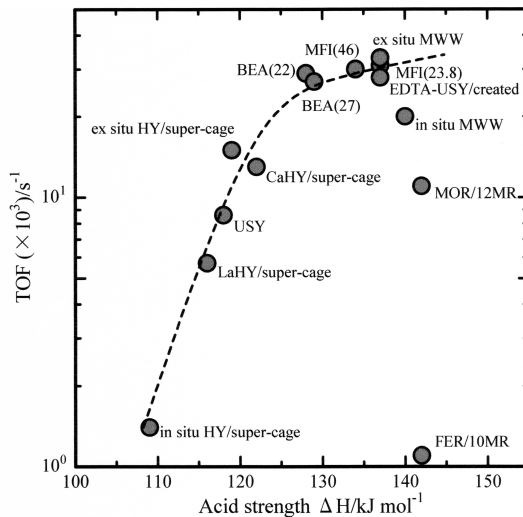


図7 いろいろなゼオライトにおけるオクタン分解反応のTOFと酸強度 ΔH の相関性

を認めることができる。

以前Jacobsは、OHのバンド位置がゼオライト元素のSandersonの平均電気陰性度に依存するという相関性を提出している¹¹⁾。これは、電気陰性度が大きいほど、バンド位置は低波数にシフトするというもので、FAU、LTL、それにMFIなどの12および10員環中のOHに関する有名な相関性である。これはゼオライトを構成するすべての元素の組成がOHバンド位置、すなわち酸強度に影響するというもので、シリカアルミナ比と酸強度の間に相関性があるとの結論を導くものである。しかし、現在の段階でかれらのまとめたデータをみると、一般性が必ずしもなく、都合のよいものを適当に並べたものように見える。組成も一つのパラメータと見ることもできようが、これを広範囲に適用することは難しいと思われる。たとえば、MFIゼオライトの酸強度が組成によって広範囲に変わることを明らかにした研究はあるだろうか。

もうひとつ興味深い相関性は図7に示した ΔH とパラフィン分解反応のTOFの関係である⁹⁾。この相関性の背景には、HaagとDessauによるパラフィン分解機構がある¹²⁾。彼らは高温、低圧の条件ではパラフィン分解はBrønsted酸点上で5配位のcarboniumイオンを中間体とする一次反応機構により進むとしている。そこで、炭化水素とBrønsted酸

点のどちらにも一次反応が成立することを確認した条件、温度500℃オクタン14 Torr、で反応速度を測定し、Brønsted酸点数でこれを割ることによって、TOFを計算した。なお、ここで複数のBrønsted酸点がある場合は、大きな細孔のつよい酸強度 ΔH を持つBrønsted酸点を活性サイトとした。図7はTOFが ΔH につよく依存することを示している。ただし、MORの強い酸点での値がやや小さくなっていることについては、今後の検討が必要かもしれない。しかしこれを除くと、パラフィンの分解がHaag-Dessau機構によりBrønsted酸点上で進行することを裏付けている結果である。これは、TPD測定によってもとめた酸強度 ΔH の触媒反応との相関性を明確に示した結果である。

5. DFT計算によるアンモニア吸着熱の計算と実験値との一致

これまでIRMS-TPD法による酸性質の測定について、その背景と実験結果について述べてきた。その結果、Brønsted酸点について、非常に詳細な検討が可能となることがわかった。ことに、従来はまったくわからなかった酸点の構造に関して、明確な結論が得られ、Brønsted酸点の物理化学的考察が徐々に精密化されることを実感した。その研究の延長上にあるのが、次に述べるBrønsted酸点へのアンモニア吸着熱の密度汎関数理論(DFT)計算である。われわれは理論計算については初心者であり、理論的な知識に乏しい。しかし、現在市販されている計算ソフトはその知識のないところを補って余りある。現在はAccelrys社のMaterials Studio Dmol³を使って、アンモニアの吸着熱を計算している。また、スペインのValencia工科大学にあるA. Corma率いるゼオライト研究の巨大な組織の一員で、理論計算を担当しているG. Sastre博士に要点をみてもらい、議論しながら研究を進めている。

一例としてFAUにおける計算例を示す。図8はMaterials StudioにあるゼオライトのLibraryからとったYゼオライトの結晶モデルである。末端をHでとじているので、図にあるモデルの構造は、 $\text{HAlSi}_{47}\text{O}_{78}\text{H}_{36}$ である。Tサイトは合計48あり、ここにBrønsted酸点の一つだけあることを示している。中央のスティックとボールで示した部分をEmbedded 8Tクラスターと呼んでおり、Brønsted酸点の中核

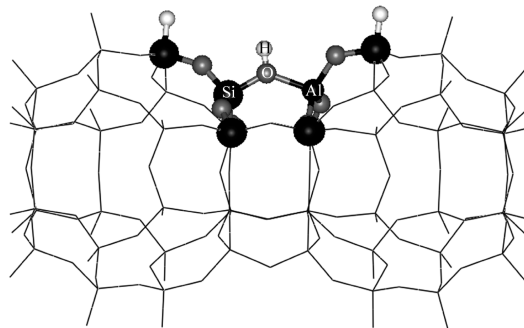


図8 DFT計算で用いたYゼオライト結晶モデル：中央に示したのが最適化されたBrønsted酸点Embedded 8T Cluster

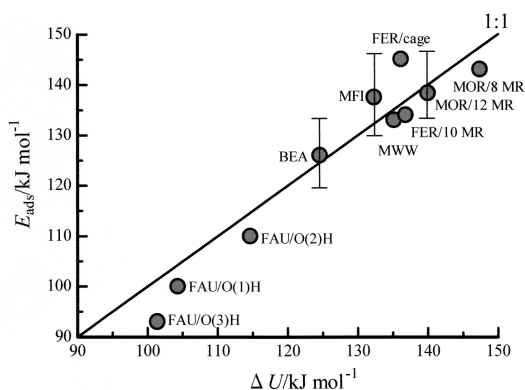


図9 DFT法で計算したアンモニア吸着エネルギー E_{ads} とIRMS-TPD実験で得た ΔU の相関性

的なモデルである。図に示されているのは上でも説明したO(1)Hである。計算では、このカラーで示した部分だけを最適化し、安定な構造モデルとその際の安定化エネルギー値を得る。なお、計算は交換汎関数BLYPを使用して行った。つぎにここに NH_4^+ を吸着させ、おなじく安定化エネルギー値を計算する。 NH_4^+ の吸着エネルギーはこのようにして得た計算値から、式 $E_{\text{ads}} = (E_{\text{H-Z}} + E_{\text{NH}_3}) - E_{\text{NH}_4\text{-Z}}$ により計算する。一方実験では ΔH を求めたが、 E_{ads} に対応するためには内部エネルギー変化 ΔU にしておいたほうが理論的には正しい。実際にはそれほど差はないが、式 $\Delta U = \Delta H - RT$ で ΔU を計算する。ただし、温度 T は脱離ピーク温度としている。図9はこのようにして計算した吸着エネルギー E_{ads} を ΔU に対してプロットしたもので、両者はよい一致を示

表2 4種のHCHAゼオライトOHのバンド位置, 酸量, 酸強度 ΔU , 理論値 E_{ads}

バンド位置 cm^{-1}	同定	酸量 mol kg^{-1}	ΔU kJ mol^{-1}	E_{ads} kJ mol^{-1}
3644	O(2)H	0.50	134	127.9
3616	O(1)H	0.65	131	129.3
3575	O(3)H	0.52	128	131.3
3538	O(4)H	0.40	101	110.1

している¹³⁾。実験結果が理論計算によりうまくサポートされており, 大変に興味深いものがある。

この理論計算においては, 計算対象の元素数(クラスターサイズ)や構造のとりかた, また汎関数はどれを使うとよいかなどの検討が必要であるが, すでにそれらの多くは検討済みであり, おおむね上で説明した方法でよいことがわかっている。またここには, 理論的に安定化した構造の幾何学パラメータとアンモニア吸着エネルギーがどのように関連しているかを研究するための興味深いデータが提供されている。

6. IRMS-TPD と DFT 計算を併用する酸性質研究

これまでの説明でわかるように, 現在, 実験と理論の両面でBrønsted酸点を詳細に検討することのできる研究体制が整っている。もともとこの手法はゼオライトだけに限るものでなく, 酸化物も研究対象としているのであるが, 酸化物の場合酸点の分布が幅広いことや, OHバンドが幅広いことが多いなどの特徴があり, これらが詳しい研究には大きな障害となっている。これに比較すると, ゼオライトは大変に研究しやすい状況にある。二つの研究例を紹介して本稿をおえる。

チャバサイトはYゼオライトと同じく, Tサイトが一種類しかなく, 四種のOHの可能性があるが, 実際IRでも4本のIRバンドが観察される。それらのBrønsted酸点強度を実測し, さらにDFT計算によって計算した。表2に示すように, ΔU と E_{ads} 値はほぼ一致しており, 正確に同定・測定されていることを立証している¹⁴⁾。

Yゼオライトは石油精製の触媒として使用されて

おり, 人類の福祉に貢献するもっとも重要なゼオライト触媒といえよう。純粋なHYは実際には不活性であり, スチーミングしてUSYとするか, アルカリ土類イオン交換Yゼオライトとすると活性を示す。この, ゼオライト触媒研究者として非常に興味深い対象は長い間の研究にもかかわらず, 依然として明確になっていないところがある。CaやBaをイオン交換したMHYゼオライトの酸性質をIRMS-TPDで測定し, これをDFT計算で確認した結果, ソーダライトケージ中の交換サイトにイオン交換された M^{2+} によって, スーパーケージ中のBrønsted OH酸強度がよくなり, 触媒活性を持つようになることがわかった¹⁵⁾。このモデルはおそらくUSYに対しても適用されると思われる。

文 献

- 1) N. Katada and M. Niwa, *Catalysis Surveys from Asia*, **8**, 161-170 (2004).
- 2) 片田直伸, 丹羽 幹, ゼオライト, **21**, 45-52 (2004).
- 3) R. J. Gorte, *Catal. Lett.*, **62**, 1 (1999).
- 4) 例えば, A. Trunschke and B. Hunger, *Topics in Catal.*, **19**, 215 (2002).
- 5) M. Niwa, K. Suzuki, N. Katada, T. Kanougi, and T. Atoguchi, *J. Phys. Chem., B*, **109**, 18749 (2005).
- 6) K. Suzuki, N. Katada, and M. Niwa, *J. Phys. Chem., C*, **111**, 894 (2007).
- 7) M. Czjzek, H. Jobic, A. N. Fitch, and T. Vogt, *J. Phys. Chem.*, **96**, 1535 (1992).
- 8) M. Niwa, S. Nishikawa, and N. Katada, *Microp. Mesop. Mater.*, **82**, 105 (2005).
- 9) K. Suzuki, T. Noda, N. Katada, and M. Niwa, *J. Catal.*, **250**, 151 (2007).
- 10) H. Fujita, T. Kanougi, and T. Atoguchi, *Appl. Catal., A: General*, **313**, 160 (2006).
- 11) P. A. Jacobs and W. J. Mortier, *Zeolites*, **2**, 226 (1982).
- 12) W. O. Haag and R. M. Dessau, "8th International Congress on Catalysis, Proceedings", Verlag Chemie, Weinheim, Vol.II, p.305 (1984).
- 13) K. Suzuki, G. Sastre, N. Katada, and M. Niwa, *Chem. Lett.*, **36**, 1034 (2007).
- 14) K. Suzuki, G. Sastre, N. Katada, and M. Niwa, *PCCP*, **9**, 5980 (2007).
- 15) T. Noda, K. Suzuki, N. Katada, and M. Niwa, unpublished.

Combined Study on the Brønsted Acidity in Zeolites using
IRMS-TPD (Infrared Spectroscopy / Mass Spectroscopy Temperature-Programmed Desorption) of
Ammonia Measurement and DFT (Density Functional Theory) Calculation

Miki Niwa, Naonobu Katada, and Katsuki Suzuki

Department of Chemistry and Biotechnology, Graduate School of Engineering, Tottori University

Our recent progress in the study of Brønsted acidity in zeolites is reviewed. A new method of IRMS-TPD of ammonia provides us with valuable information on the Brønsted acidity. DFT calculations of the heat of ammonia adsorption support the IRMS-TPD measurements. Thus, we have a new combined method of experiment and theory to study the Brønsted acidity in zeolites.

Keywords; IRMS-TPD, ammonia, Brønsted acidity, DFT calculation