

「環境保全のためのナノ構造制御触媒と新材料の創製」

平成14年度採択研究代表者

辰巳 敬

(横浜国立大学大学院工学研究院 教授)

「有機無機複合相の自在変換によるグリーン触媒の創製」

1. 研究実施の概要

層状前駆体から由来するゼオライトについて、層と3次元結晶の間の可逆的な構造変換という前例のない方法でメタロシリケート触媒を作り出すことを目的として研究を行った。環状アミンを型剤に用い、熱処理と酸処理を組み合わせることでホウ素を含まないMWW型シリケートを合成し、これを出発物質として、チタン源と環状アミン存在下で水熱処理して得られる層状物質を経由して、四配位のチタンを骨格に有する3次元結晶構造の新規チタノシリケート、Ti-MWWを調製できた。この方法で調製したTi-MWW触媒は過酸化水素を酸化剤としたアルケンエポキシ化に非常に高活性を示した。層状由来の構造を持つと見なすことができるゼオライトの種類は多いため、この方法は汎用な合成法とすることができるものと考えている。

界面活性剤の形成する自己組織体の形態はその親水性-親油性バランス、温度、添加物などの多くの因子によって変化する。これらの諸因子の制御による自己組織体構造を制御し、メソポーラス物質・ゼオライトの構造誘導の支配原理を見極めることを目指した。塩酸、オルトケイ酸エチル(TEOS)、水ガラスなどが界面活性剤(CTAB)水溶液中の自己組織体構造に及ぼす影響を調べたところ、塩酸の共存によりCTAB水溶液のミセル水溶液相領域は拡大するが、水ガラスの共存によって縮小することが明らかになり、TEOSの添加後の時間経過とともに界面活性剤単独の自己組織体の構造周期より小さい周期のナノ構造が形成されることが分かった。

メソポーラス物質の合成の際に得られる有機無機複合相が非常にソフトであり、相の変換が容易に起こること、また、カチオン性界面活性剤を用いて得られるシリカの相構造がアニオンによって影響されることを見いだした。さらのこのソフト性を利用した触媒調製法を試みた。SBA-1メソポーラスシリカの表面に埋め込まれたMoのヘテロポリ酸と型剤アミンの相互作用が強く、層状構造への相変換が起こった。酸処理を繰り返すことにより、ヘテロポリ酸が埋め込まれたメソポーラスシリカを調製することに成功した。この物質の触媒作用を解明すると共に、同様な手法を活かして新種の活性点を創出する研究を進める。

2. 研究実施体制

辰巳グループ

①研究分担グループ長：辰巳 敬（横浜国立大学大学院工学研究院、教授）

②研究項目：

- ・構造変換によるゼオライトの構造制御と触媒反応への応用
- ・メソポーラスシリカの構造変換機構の解明とマイクロ・メソ秩序構造物質の創製

國枝グループ

①研究分担グループ長：國枝 博信（横浜国立大学大学院環境情報研究院、教授）

②研究項目

- ・界面活性剤自己組織体ナノ構造の構造変化機構の解明
- ・メソポーラスシリカ前駆物質の存在による界面活性剤自己組織体ナノ構造の構造変化

吉武グループ

①研究分担グループ長：吉武 英昭（横浜国立大学大学院環境情報研究院、助教授）

②研究項目

- ・型剤-活性点相互作用による構造制御と触媒反応への応用の検討