

戦略的創造研究推進事業
ナノテクノロジー分野別バーチャルラボ

**研究領域「環境保全のためのナノ構造制御
触媒および新材料の創製」**

研究課題「有機無機複合相の自在変換によるグ
リーン触媒の創製」

研究終了報告書

研究期間 平成14年11月～平成20年3月

研究代表者：辰巳 敬
(東京工業大学 資源化学研究所、教授)

1 研究実施の概要

辰巳 G

規則性無機多孔体と有機物との相互作用を駆使して、無機多孔体構造を自在に制御する方法を確立し、得られた知見を、医薬品、液晶、有機電子材料などのファインケミカルズ合成プロセスにおけるグリーン触媒の創製に活かすことを目標にした。

高活性なゼオライト触媒の合成のために、活性種のゼオライト骨格への新規な導入法を開発が望まれていた。我々は、層状前駆体から由来するゼオライトの層と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に成功し、このような手法で調製したMWW型チタノシリケート触媒が既存のMFI型などと比べて、不飽和アルケン類の酸化反応に対して非常に高活性であることを見出した。

メソポーラスシリカは、界面活性剤分子集合体とシリカ前駆物質との相互作用を経て合成されるが、利用されている界面活性剤はカチオン性、非イオン性、長鎖アルキルアミンであり、最も汎用的なアニオン性界面活性剤を用いた合成例は報告されていなかった。我々はアニオン界面活性剤を構造規定剤(SDA)としたメソポーラスシリカの合成に世界で初めて成功した。さらに、不斉炭素有するアミノ酸系アニオン性界面活性剤を用いた結果、粒子がらせん状にねじれた形態で、かつ内部にキラルなメソ細孔を有するシリカの合成にも成功した。

國枝／荒牧 G

メソポーラスシリカの有機テンプレートとなる界面活性剤分子集合体の構造は親水部の反発および水との相互作用、分子集合体中の極性-非極性界面における界面張力、疎水鎖の相互作用のバランスによって決定され、その結果として多様なモルフォロジーを形成する。本研究では界面活性剤分子間の相互作用の制御による分子集合体構造の変換原理を明らかにするとともに、その知見に基づき、シリカ前駆物質と有機テンプレートとの複合体からメソポーラスシリカへの構造形成機構を明らかにすることを目的とした。

反応系においてシリカ前駆物質は界面活性剤ミセルの親水部近傍に濃縮されており、縮合により界面活性剤親水基間の相互作用を変化させ、ミセル-シリカ前駆物質複合体の形状が球状からひも状へ変化し、最終的に2-dヘキサゴナルの規則的構造に成長することが小角X線散乱測定によりわかった。また、シリカを含まない界面活性剤水溶液系において高濃度において形成されるリोटロピック液晶とシリカ前駆物質を添加して得られるメソポーラスシリカの規則構造にある程度の相関があることを見だし、メソポーラスシリカの構造デザインの新しい手法を構築する足がかりを得た。

吉武 G

規則性メソポーラスシリカやチタニアはそれまで存在なかった空間領域での構造規則性を持つため触媒、吸着媒担体としての利用が期待されている。一般的にはゼオライトでは不可能な大きさの分子ふるいや、マイクロ反応器などの効果が期待されるためであるが、これらの新しい物質群は機能と関連する重要な合成上の特質を有する。第一に非晶質性であることと、特殊な曲率のため表面やバルクに現れる特殊な原子配列が出現しうる。第二にそれらの原子配列は、メソポーラス固体を担体としての利用した場合、触媒活性成分や吸着点の局所構造にも影響を及ぼしうる。第三にメソ構造規則性の起源は、主として界面活性剤ミセル等の分子集合体に求められるが、合成の途中で生じる超分子有機無機複合構造の設計や構造変換によっては、従来不可能だった触媒や吸着剤構造が合成可能になる。

このような観点から、非晶質メソポーラスチタニアの触媒担体としての利用における特殊なTi配位構造の活性成分の配位構造への効果および型剤ミセルとの相互作用による有機官能基の配置の制御を様々な系を題材に様々な角度から検討した。メソポーラスチタニア上では、VおよびCeはそれぞれ4価、3価が支配的な原子価となり、アナターゼやルチルに担持した場合より明かに原子価が小さかった。ミセルなしで合成してメソ構造が発達していない触媒、あるいは、加熱焼成して構造壁をアナターゼにしても低原子価のままであったため、非晶質性が起源ではなく、メソ細孔構造を与えるTiの局所構造が原因であると考えられる。また、これらの触媒の触媒酸化活性は顕著に大きかった。また型剤ミ

セルと直接有機官能基を相互作用させることにより調製される有機修飾メソポーラスシリカは、ミセル除去後も官能基が全て表面に露出することが保証される。この合成法は、シロクサン結合形成を攪乱しやすいアミノプロピル基などの導入の場合でも、メソ細孔構造が得られること、また従来法により合成した対応する修飾メソポーラスシリカに比べ官能基密度を数倍にすることができた。このような有機修飾シリカは高性能吸着剤としての機能を有することを明らかにした。

浅岡 G

ゼオライト構造の複合合成によってゼオライト・ナノポーラス構造制御を可能にし、環境保全に役立つナノ構造触媒合成の設計合成法の確立を目指した。異種ゼオライト複合条件の検討と複合状態の観察からゼオライト・ナノポーラス構造複合化についての手がかりも得た。メタロシリケートについても、複合化を試みた。複合化によって得られたナノ構造制御触媒を用いて環境負荷を大幅に低減した触媒反応を開発した。

ナノポーラス構造体とゼオライトの構造複合によってゼオライト種の結晶サイズが制御された触媒を目的として、MWW ゼオライトと他のゼオライトの複合化調製条件の探索を試みた。複合化が実現した系は、主に、①有機テンプレート剤の複合使用、②種の利用、③有機テンプレート不均一化剤である。とくに、③は、新たなゼオライト合成の場をなした。今注目されているマイクロリアクター技術をゼオライト合成に関してユニークな添加剤で通常のリアクターで実現しており、新たなゼオライト合成原理の提案にもなっている極めて原理的な知見を得ている。この原理に着目して新たな系の複合化を検討するとともに複合化によって得られたナノ構造制御触媒を用いて環境負荷を大幅に低減した触媒反応を開発した。

ナノオーダーの構造単位を有するナノポーラスアルミナと MFI、MWW あるいはベータゼオライトを構造複合することによって、触媒活性を発揮するゼオライト種の結晶サイズと酸性質が制御できて、触媒としての活性・選択性・寿命の向上が図れた。ゼオライトがナノポーラス構造を有するように合成しないしは加工をして、ナノオーダーの構造単位を有するナノポーラスアルミナと構造複合することによって、協奏的触媒作用を発揮する素材を開発した。

岩本 G

ナノ空間物質を用いた場合にのみ実現可能な新しい機能および触媒反応の開拓を目指し、壁構造の有機無機複合化による新しい機能材料の創製、規則性ナノ空間物質の特異な酸触媒特性の究明、金属イオン担持ナノ多孔体の触媒特性の解明、メゾ多孔体の有機修飾による高機能光材料の調製を行った。これまで未踏であった種々の不均一系触媒作用を発見し、均一系を越える超選択的不均一系触媒反応を実現できる見通しを得た。

エポキシド類は酸触媒存在下で SN2 的に水やアルコールと反応するため、一般にトランス開環体を与える。例外的に反応点に強い電子供与効果が作用するとシス開環体が混入する。これに対し、メゾ多孔体 MCM-41 を触媒とし、1-フェニルシクロヘキセンオキシド類に水やアルコールを作用させると、広い基質一般性を持ってシス開環体を得られることを見出した。この場合のシス選択性は報告されているどの均一系触媒より優れる。また、ニッケルイオン担持シリカメゾ多孔体 MCM-41 (Ni-M41) を触媒とするとエチレンを高選択的にプロピレンに転換できる (ethene to propene: ETP) 事を見出した。さらに、シリカ系メゾ多孔体の細孔内をフェニル基で修飾後ジアリールエテンを担持する、あるいはアゾベンゼン基で修飾することにより光応答性細孔の調製を実現できた。

窪田 G

無機の規則性多孔体と高度に設計・合成された有機化合物との相互作用を駆使し、規則性多孔体のミクロ構造およびマクロ形態を制御する手法を確立し、付加価値の高いファインケミカルズ合成における環境調和型触媒を創製することを目指した。

最近注目されているゼオライトの一つに、12 員環と 10 員環が交差した細孔をもつゼオライト類がある。これらはゼオライトの中では比較的広い反応場を提供し、触媒活性点濃

度のレンジが広く、安定性が高いことから、主として 6 員環～7 員環の有機化合物が関わる反応の触媒として有望である。このような観点より、新型ゼオライト MCM-68 類縁体の簡便な新規合成法の開発をねらった。合成法の工夫により、新規骨格の創出だけでなく、これまでに無い組成のゼオライトを合成することを目標とした。高活性なチタノシリケート Ti-MCM-68 の合成、ならびに従来とは全く異なるゲル組成で MCM-68 に類似した新規骨格が得られた。

メソ細孔表面にアミノ基を固定化したメソポーラスシリカは、ナノ空間内でアミノ基の有する高い反応性（固体塩基触媒能や金属カチオン配位能等）が利用でき、活発な研究が行われている。アミノ基含有メソポーラスシリカをアニオン性およびカチオン性界面活性剤を用いて共縮合法により合成し、両者の物性および触媒性能を比較検討した結果、アニオン性の系 (APS-AMS) はカチオン性の系 (APS-MCM-41) よりはるかに高い活性を示すことを見出した。その要因として、表面シラノールの露出度の他に、アミノプロピル鎖のジオメトリーが複合的に関与していることが示唆された。

2 研究構想及び実施体制

(1) 研究構想

辰巳 G

規則性無機多孔体と有機物との相互作用を駆使して、無機多孔体構造を自在に制御する方法を確立し、得られた知見を、医薬品、液晶、有機電子材料などのファインケミカルズ合成プロセスにおけるグリーン触媒の創製に活かすことを目標にした。具体的な研究計画は以下のとおりであった。

構造変換によるゼオライトのナノ空間制御と触媒反応への応用

高活性なゼオライト触媒を合成するために、活性種のゼオライト骨格への新規な導入法を開発する必要があった。H15 年度、層状前駆体から由来するゼオライトの層と 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ができた。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な高活性を示した。H16 年度において、層状前駆物質から調製される MWW 型ゼオライトの層間を拡張した新しい構造のゼオライト Ti-YNU-1 を得ることに成功し、環状アルケンのエポキシ化に高い活性を示した。H17 年度以降、チタン以外の金属の挿入や他の酸化反応へと展開した。その結果、H18 年度、Ga を導入することに成功し (Ga-ILE-MWW)、Baeyer-Villiger 酸化に対して高い活性を示す触媒の開発に至った。以上、ゼオライトの層状前駆物質から層間拡張した新規ゼオライト触媒を調製できる手法を開発できた。本法はグリーン触媒を調製する有用な手法であり、さらに発展していくものと考えられる。

アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカの合成と応用

メソポーラスシリカは、カチオン性界面活性剤、非イオン性界面活性剤あるいは長鎖アルキルアミンの超分子構造を鋳型に用い、その周囲に Si 種を静電的相互作用または水素結合により Si 種を配列させるルートが確立されているが、アニオン性界面活性剤を用いての合成ルートは報告されていない。種々検討を行った結果、H15 年度において、Si 源としてアミノ基を有する 3-aminopropyltriethoxysilane (APS) と tetraethyl orthosilicate (TEOS) の混合物を使用することにより、アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカ

“AMS” (Anionic surfactant templated Mesoporous Silica) の合成に至った。さらに AMS の合成に利用できるアニオン性界面活性剤について検討した結果、不斉炭素を有するアミノ酸系アニオン性界面活性剤を用いた場合、粒子がらせん状にねじれた形態で、かつ内部にキラルなメソ細孔を有するシリカが得られることを見出した。H16 年度、このキラルシリカに関して細かく合成条件 (熟成時間、熟成温度、攪拌の有無) を精査し、最適な合成条件を見出した。H17 年度は、界面活性剤のキラリティーと得られるキラル AMS の構造の関係を精査した。光学的に純粋で絶対配置が逆の界面活性剤を用いることで、正反対の不斉を誘起することを見出した。また、キラルな AMS の不斉吸着材料としての可能性を検討した結果、左巻きリッチなキラルシリカは L 体のアラニン誘導体を、右巻きリッチなキラルシリカは D 体のアラニン誘導体を選択的に吸着し、光学分割に有意なレベルで成功した。H18 年度において、さらに質の高いキラルメソポーラスシリカ得るために合成方法の改良を行った。合成溶液に NaOH と HCl の代わりに塩基性アミノ酸を添加することで質の高いキラルな AMS を容易に得られることを見出した。

塩基性アミノ酸を用いた規則性シリカナノ粒子の合成

H18 年度、キラルシリカの合成に際して塩基性アミノ酸の有用性を見出した。そこで、より単純な系である TEOS と塩基性アミノ酸の組み合わせに着目したところ、TEOS をシリカ源に用いた液相法によるシリカ粒子の合成において、リジンやアルギニンのような塩基性アミノ酸を溶解させた水溶液を用いたところ、10 nm 程度の均一なシリカ粒子を形成することに成功し、乾燥過程を経てそれらを規則的に配列させることにも成功した。引き続き研究中である。

國枝／荒牧 G

界面活性剤分子集合体-シリカ前駆物質複合体の構造変換機構の解明

界面活性剤テンプレート法によるメソポーラスシリカの合成において、加水分解されたシリカ前駆物質がイオン間または双極子間相互作用により界面活性剤ミセルの親水基部へ吸着し、界面活性剤分子集合体とシリカ前駆物質の複合体を形成する。この複合体の構造およびシリカの重合反応進行に伴う複合体の構造変換を小角X線散乱法を主な手法として解明することを当初目標とした。具体的な研究計画は以下のとおりであった。

14～16 年度は構造決定が容易なりオトロピック液晶とシリカ前駆物質複合体の構造変換機構を解明するため、アニオン性アニオン性界面活性剤にアミノシランを対イオンとして結合させたものリオトロピック液晶にアルコキシシランを酸性条件で添加した系について、複合体の構造変化を反応時間を変数として調べる計画をたてた。

17～19 年度は界面活性剤ミセルとシリカ前駆物質複合体の構造変換機構を解明するため、非イオン性界面活性剤ミセル水溶液にシリカ前駆物質を添加する系において小角X線散乱法、動的光散乱法を主に用いて複合体の構造変化を反応時間を変数として調べる計画をたてた。この計画は反応時間に対して測定時間が長くなり過ぎるため、当初計画を改め、シリカ前駆物質の濃度を制御することによりシリカ重合の程度を制御した平衡系での複合体構造解析を行なうこととした。これにより複合体構造が単独のミセルからより高次の構造へ変化する端緒をとらえることができた。この新しいアプローチにより、界面活性剤分子構造と得られるメソポーラスシリカの構造の関連性を明らかにし、さらに界面活性剤系の状態図を用いたメソポーラスシリカの構造デザインを行なうという計画をたてた。

また、初年度～最終年度にわたって、界面活性剤水溶液系の分子集合構造の変換機構について検討する計画をたてた。本研究の着想は、界面活性剤水溶液系において界面活性剤濃度の上昇とともにミセルからリオトロピック液晶への構造変換が競奏的鑄型機構によるメソポーラスシリカの構造形成と類似しているというところから発生している。また、シリカ前駆物質は界面活性剤の親水部に吸着、重合をおこし、界面活性剤分子集合体の構造変換を引き起こしていると予想した。そのため、界面活性剤分子間の相互作用を制御することで分子集合体構造の自在制御を行なうことを目標とし、研究をすすめ、さらに、その知見をシリカ前駆物質を含む系における構造変換機構の解明に利用することを考えた。

吉武 G

型剤除去前メソ構造体は無機固体中の化学結合ネットワークが発達していないためこの状態で穏やかに条件を変化させ、メソ構造変換を試みた。これは、分子性の相互作用とイオン性相互作用を精密にコントロールすることが必要であることが判明した。このためこの方法を発展させ、官能基を表面に高密度に分布させること、あるいはシリケートとして密度を最大にすることなどの合成手法の開発することが次の目標となった。これらの有機官能基修飾メソポーラスシリカは金属イオンや有機物の配位に有効に働くため、吸着剤としての応用が常に合成法の評価と関係し、それ自体が目標となってきた。と関連している。またメソポーラス酸化物の壁構造を与える特殊な原子配列が、触媒活性成分の原子配列をどのように影響するか解明することを目標としていたが、メソポーラスチタニア上のV、Mo、W、Ceを検討した結果、複数原子価をとりやすい元素の場合、酸化数を小さくすることが明らかになった。この酸化還元ポテンシャルのシフトと様々な触媒作用との関係を各論的に明らかにするのがその後の目標となった。

浅岡 G

構造複合によるゼオライト・ナノポーラス構造制御と触媒反応への応用

ゼオライト・ナノポーラス構造の合成条件を精密かつ詳細に検討し、それらの構造間での複合の条件と複合の均一度を観察する。具体的には、ナノポーラスな外表面構造を有する MWW (MCM-22) ゼオライトと他のゼオライトとの複合化の合成条件を、アニオンの種類、添加有機物質、共存電解質の効果、組成比、濃度、温度プログラム、合成時間などの因子について検討する。これらの知見からゼオライト・ナノポーラス構造複合化についての手がかりを得る。また、「構造変換によるゼオライト・メソポーラス構造制御グループ(辰巳グループ)」と連携して、メタロシリケートについても、複合化を試み、環境関連技術でのゼオライト・ナノポーラスに起因する物理的性質や触媒特性について単一ゼオライト構造のメタロシリケートと比較し複合化の効果を明らかにする。

ゼオライトがナノポーラス構造を有するように合成ないし加工、さらにはナノオーダーの構造単位を有するナノポーラス構造体を構造複合することによって、活性・選択性・寿命が向上したナノ触媒を得る。

岩本 G

規則性ナノ多孔体の壁構造制御による新機能および新触媒反応の開拓

規則性無機ナノ空間に関してはこれまでも多くの研究が報告されているが、現時点では高表面積あるいは大細孔径を単純に利用している研究が多く、例えばシリカ系ナノ多孔体の場合、高級なシリカゲルの範疇を出ない用途が大部分である。これに対し我々は規則性ナノ空間物質を、(1) 壁厚が薄く、ほとんどの構成元素が表面に位置する、(2) これまでの不規則表面と異なり均一な表面を持つ、(3) 細孔径が均一かつ制御可能である等の特徴を有する特異な物質群と捉え、規則性ナノ空間がこれまでの化学とは異なる未知の作用・機能をもたらすことを明らかにしてきた。

例えば、ほぼ中性のシリカが極めて高効率な酸触媒とし機能することを見出した。この作用は従来の酸塩基概念では全く説明できず、第4の形状選択性と呼ばれている。この効果を使うと、例えばフリーデルクラフツアシル化反応をカルボン酸によって直接進行させることができる。また、ニッケルイオンと組み合わせると、気相流通反応系でエチレンをプロピレンに転換できる。これらの反応はいずれも夢のグリーンプロセスとされていたものであり、規則性ナノ空間触媒を用いた場合にのみ特異的に進行する。さらに我々は、ナノ空間の壁成分／構造を工夫し、水中の有害酸素酸イオンの選択的除去を可能にしたばかりでなく、固体による不斉接触酸化を初めて達成した。後者は長い間その実現が待たれていたものである。また、半導体のバンドギャップ制御にも成功し、化学反応場の外部制御に道を拓いている。

本研究ではこれらの成果に基づいて以下の検討を実施することとした。

(i) 規則性ナノ空間の特異性を活かした新しいグリーンプロセスの開拓

①シリカ系多孔体の酸触媒特性がどのような反応に拡張できるかを検討する。同時に、酸特性と細孔径、表面吸着水との関連を検討する。②規則性ナノ空間内に金属イオンを担持したあと、さらに有機分子で修飾した試料を作製し、特定の官能基あるいは立体構造を高選択的に識別する能力の構築を目指す。次いで、酒石酸等の不斉配位子を用いない不斉発現法の開拓を試みる。

(ii) ナノ集積による新しい空間機能／触媒能の創出

①まず、ジルコニウムイオンと硫酸根を主成分とするメゾ構造体を合成し、この構造体中のアニオンと水中有害金属イオンの交換特性を系統的に検討する。②我々は、Niイオン担持体が常圧流通系でエチレンをプロピレンに転換できることを見出した。本年度は、種々の金属イオンあるいは第二成分の効果、反応条件の影響等を調べる。

(iii) 外部刺激応答機能の導入と触媒反応の外部制御

MCM-41のナノ細孔内に、アゾベンゼン系官能基を修飾することにより、新しい光応答型分子認識機能材料を調製する。

窪田 G

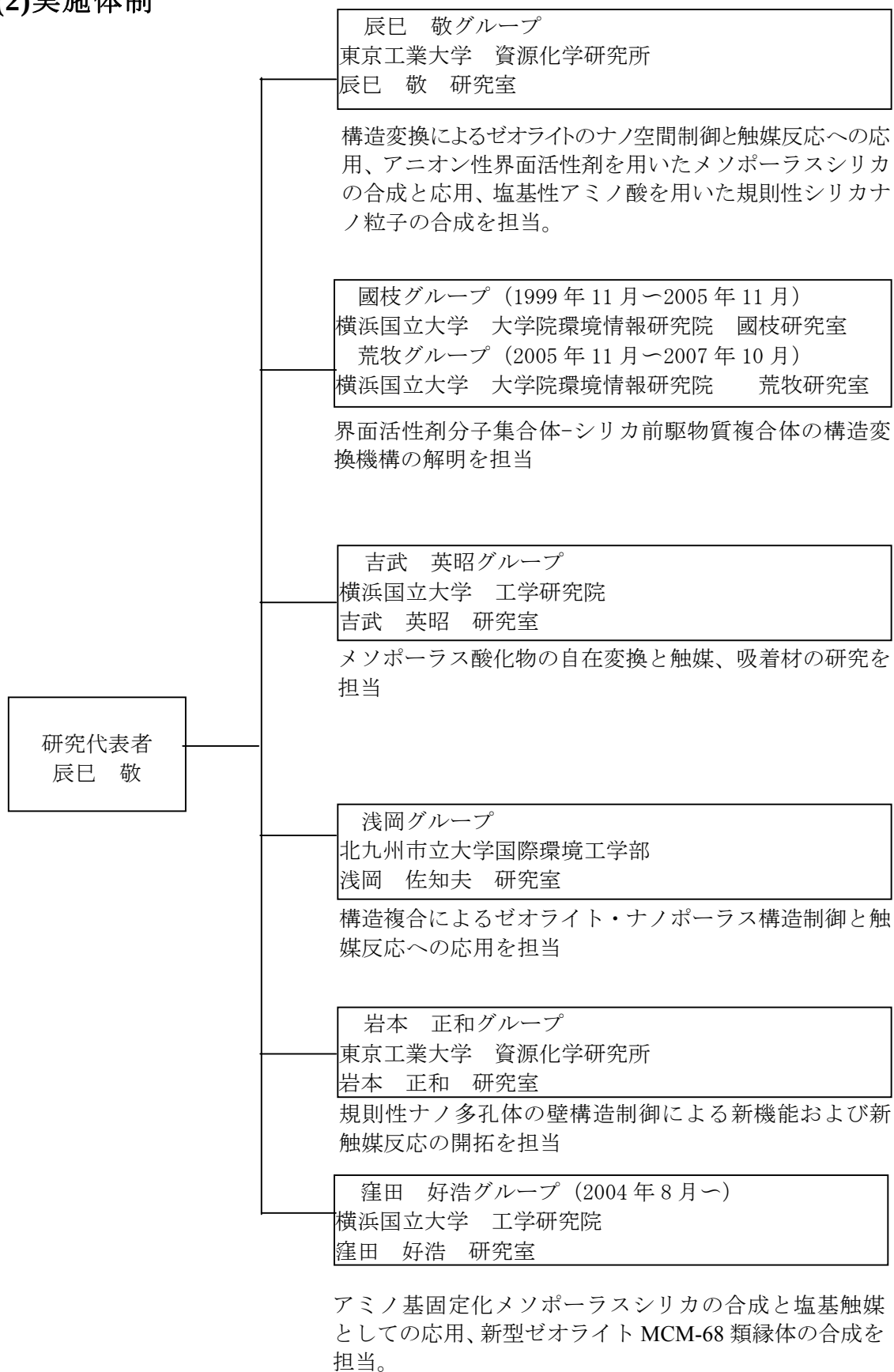
無機の規則性多孔体と高度に設計・合成された有機化合物との相互作用を駆使し、規則性多孔体のミクロ構造およびマクロ形態を制御する手法を確立し、付加価値の高いファインケミカルズ合成における環境調和型触媒を創製することを目指した。具体的な研究計画は以下のとおりであった。

辰巳 G は H15 年度において、Si 源としてアミノ基を有する 3-aminopropyltriethoxysilane (APS) と tetraethyl orthosilicate (TEOS) の混合物を使用することにより、アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカ“AMS”(Anionic surfactant templated Mesoporous Silica)の合成に成功した。AMS は静電的相互作用による「シリカ—APS-界面活性剤複合体」を経由して合成されるが、この複合体から界面活性剤のみ除去することで、アミノ基で修飾されたメソポーラスシリカを得ることが可能である。これをふまえて H17 年度、アミノ基含有メソポーラスシリカをアニオン性およびカチオン性界面活性剤を用いて共縮合法により合成し、アニオン性の系(APS-AMS)はカチオン性の系(APS-MCM-41)より高い活性を示すこと

を予測しつつ、両者の物性および触媒性能を比較検討することを目標とした。

H17 度以降、12 員環と 10 員環が交差した細孔をもつゼオライト類に着目した。これらはゼオライトの中では比較的広い反応場を提供し、触媒活性点濃度のレンジが広く、安定性が高いことから、主として 6 員環～7 員環の有機化合物が関わる反応の触媒として有望である。このような観点より、新型ゼオライト MCM-68 類縁体の簡便な新規合成法の開発、ならびに組成の多様化をねらった。

(2)実施体制



3 研究実施内容及び成果

辰巳 G

1. 構造変換によるゼオライトのナノ空間制御と触媒反応への応用

(東京工業大学 辰巳グループ)

(1)研究実施内容及び成果

いったん焼成して得られた MWW 型ゼオライトを、型剤である有機アミン（ピペリジンまたはヘキサメチレンイミン）と混合して水熱処理することで、再び層間が開いた MWW 層状前駆体へと可逆的な構造変換が起こることを見出した。この手法を用いて、B-MWW を酸により脱ホウ素した後に層間を拡げて、Ti 原子をゼオライト骨格に再挿入を行った。この処理で得られた Ti-ゼオライト触媒はアルケンのエポキシ化に高い活性を示した。また、この Ti-ゼオライト触媒は MWW 構造の層間が広がった構造を保持していることを確認し、新しいゼオライト構造であったことから Ti-YNU-1 と命名した。XRD によると Ti-YNU-1 の格子定数は a 軸と b 軸は Ti-MWW とほぼ同様であるが、 c 軸が約 2.5 Å 広くなっており、Ti-MWW のスーパーケージ細孔を規制する酸素 10MR より 2.5 Å ほど広い入り口を持つと推測でき、TEM 観察からも裏付けられた。Ti-YNU-1 の構造解明と生成機構には未解明な部分がある。しかし、チタン導入量の低いときすなわち欠陥サイトが多く存在するときのみ Ti-YNU-1 を調製できること、Ti-YNU-1 が Ti-MWW より多くのシラノール基を有することから、Ti-YNU-1 は、酸処理によって積層欠陥が生じ MWW の結晶シート同士の脱水縮合が十分に進行しなくなり生成したものであると思われる。Ti-YNU-1 は環状アルケンの液相酸化に高活性で、チタン含有量が非常に少ないにもかかわらず、最も高いシクロヘキセン転化率を示した。反応基質のサイズによる触媒活性変化の傾向から細孔入り口は $\text{Ti-MWW} < \text{TS-1} < \text{Ti-MOR} < \text{Ti-YNU-1} < \text{Ti-BEA}$ の順と見積もられ、Ti-YNU-1 は酸素 12 員環細孔の特徴と持ち、嵩高い基質の反応に応用できることがわかった。

さらに同様の処理により調製した Ga を骨格に含む YNU-1 は Ga-MWW 触媒に比べて、Baeyer-Villiger 酸化に対して高い活性を示す触媒であった。以上のことから、ゼオライトの可逆的な構造変換法がグリーン触媒を調製する有用な手法であると提案する。

昨年度までの研究では、層状前駆物質から調製される MWW 型ゼオライトでは、その層間に有機分子の再挿入が可能であることを見出し、この原理に基づいて MWW 層状前駆体の層間拡張が可能であることを見出した。本年度は、層間拡張した MWW 構造を再現よく得るための調製方法の検討を進めた。高活性な Ti-MWW を調製する過程で、MWW 型ゼオライトの層状前駆物質との可逆的な構造変換を利

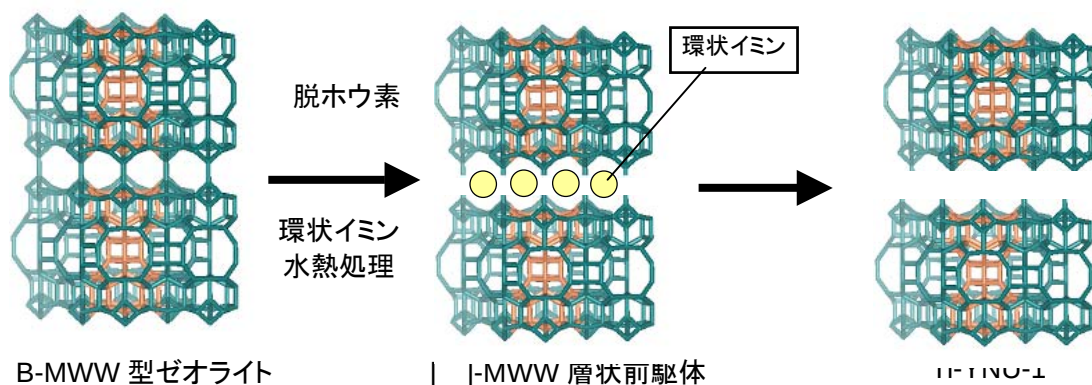


図 1. MWW 層状前駆体の可逆的な構造変換と YNU-1 の形成.

用して触媒調製した際には、MWW 構造の層間が広がった構造をもつ新しいゼオライト構造、Ti-YNU-1 が得られることをすでに報告した。これは Ti-YNU-1 の調製過程で、ゼオライト骨格から溶解したシリカの debris から供給されるケイ素原子が Ti-MWW(P)に挿入して拡張した細孔が得られたものと考えた。この推論に基づいて

MWW(P)をシリル化剤との反応させた後、焼成することにより、YNU-1 と同じ構造の 12 員環ゼオライトが得られることを確認し、interlayer-expanded (ILE-)MWW と名づけた。また Al-ILE-MWW では、10 員環マイクロ孔しかもたない Al-MWW に比べてアニソールのアシル化で高い活性を示し、また Ga-ILE-MWW でも、Ga-MWW よりも Baeyer-Villiger 酸化に対して高い活性を示す触媒であった。これは ILE-MWW の拡張した層間のマイクロ孔で反応物・生成物の分子の拡散が有利になったためと考えられる。

以上のことから、ゼオライトの層状前駆物質から層間拡張した新規ゼオライト触媒を調製できる本法はグリーン触媒を調製する有用な手法であると提案する。

(2)研究成果の今後期待される効果

MWW 型ゼオライトの層状前駆物質の層間修飾により得られた新規ポーラス物質をグリーン触媒への適用を目指す。

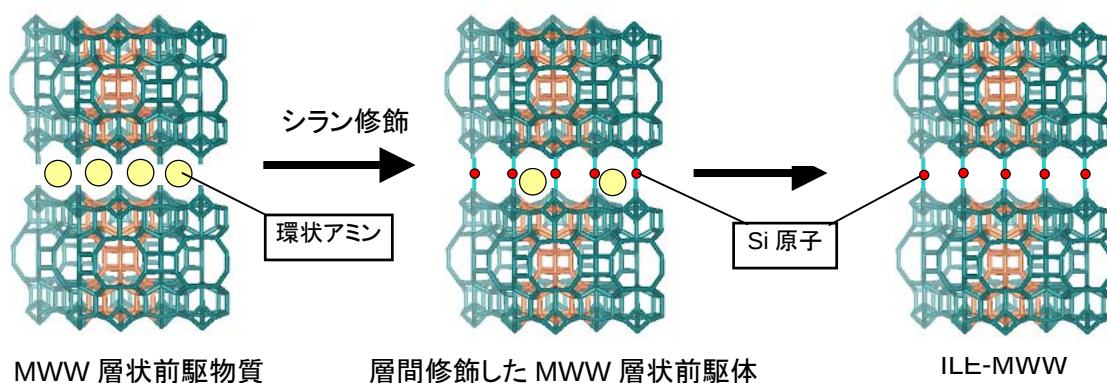


図2. MWW 層状前駆物質の層間修飾による ILE-MWW の形成.

2. アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカの合成と応用 (東京工業大学 辰巳グループ)

(1)研究実施内容及び成果

アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカの合成

メソポーラスシリカは、カチオン性界面活性剤、非イオン性界面活性剤あるいは 長鎖アルキルアミンの超分子構造を鋳型に用い、その周囲に Si 種を静電的相互作用または水素結合により Si 種を配列させるルートが確立されているが、アニオン性界面活性剤を用いての合成ルートは報告されていない。この原因は、酸性条件下ではアニオン性界面活性剤が水に不溶であり、塩基性条件下では、Si 種はケイ酸アニオンとして存在し、界面活性剤のアニオン性頭部と静電的な反発を受けるためである。しかし、Si 源としてアミノ基を有する 3-aminopropyltriethoxysilane (APS) と tetraethyl orthosilicate (TEOS) の混合物を使用することにより、アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカ “AMS” (Anionic surfactant templated Mesoporous Silica) の合成に成功した。AMS の合成には、正に帯電したアミノシラン中の -NH_2^+ と負に帯電したアニオン性界面活性剤頭部の静電的相互作用が重要であった。

キラルメソポーラスシリカの合成

無機多孔質材料にキラリティを持たせることを目的とし、アニオン性界面活性剤の親水部に不斉源をもつ長鎖アシル化アミノ酸を設計した。具体的には Mylistoyl chloride を用いて L-alanine を N-アシル化した。得られた界面活性剤 N-mylistoyl-L-alanine を $\text{C}_{14}\text{-L-AlaA}$ と表記する。これを界面活性剤とし、4 級アンモニウム塩を含んだアルコキシシラン類、 $(\text{CH}_3\text{O})_3\text{Si}(\text{CH}_2)_3\text{N}^+(\text{CH}_3)_3\text{Cl}^-$ (TMAPS)、と TEOS の両方をケイ素源として使用することで、アニオン性界面活性剤のつくる超分子ミセル構造とケイ素モノマーの相互作用を実現し、キラルな規則性メソ構造を合成することに初めて成功した。得られたメソポーラスシリカは、六角柱のロッドが左巻きにねじれた形態をしており、その六角柱の内部には、縦方向に約 2 nm 程の均一な細孔が蜂の巣状に規則的に配列し、外側と同じらせんを描いていることが明らかとなった (図 3)。

界面活性剤のキラリティーと得られるキラル AMS の構造の関係

さらに界面活性剤のキラリティーと得られるキラル AMS の構造の関係を調べた。 D-alanine を用い N-mylistoyl-D-alanine を得た。これを $\text{C}_{14}\text{-D-AlaA}$ と表記する。

($\text{C}_{14}\text{-D-AlaA}$)-AMS の XRD パターンから、($\text{C}_{14}\text{-L-AlaA}$)-AMS と同様に規則性の高い 2d-hexagonal $p6mm$ 構造を有する AMS であることが分かった。($\text{C}_{14}\text{-D-AlaA}$)-AMS の N_2 吸脱着測定によれば、細孔径は 2.3 nm、比表面積は $700 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ であり、($\text{C}_{14}\text{-L-AlaA}$)-AMS と同程度であった。FE-SEM により形態を観察したところ、ねじれた六角柱のロッド状粒子が見られた

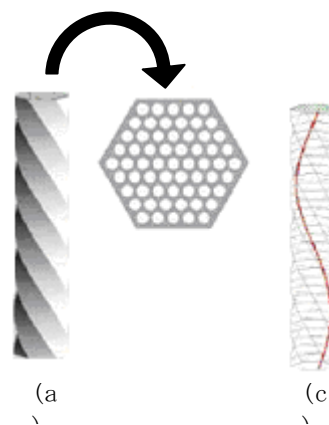


図 3 らせん状細孔を有するメソポーラスシリカの模式図(a) 形態、(b) 断面、(c) 粒子内でのらせん状細孔の様子

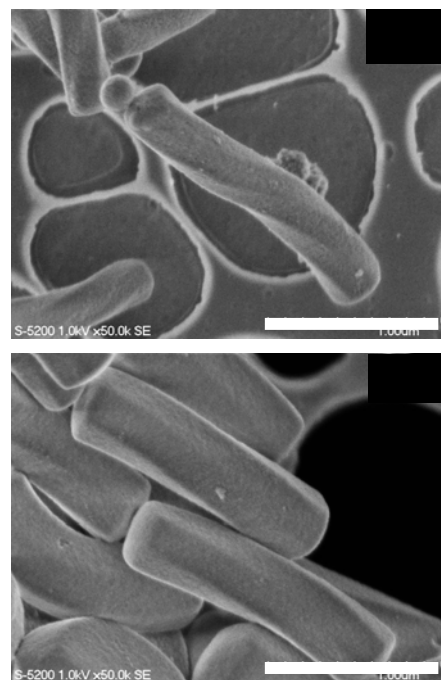


図 4 $\text{C}_{14}\text{-L-AlaA}$ から優先的に生成する左巻きの ($\text{C}_{14}\text{-L-AlaA}$)-AMS 粒子 (A) および $\text{C}_{14}\text{-D-AlaA}$ から優先的に生成する右巻きの ($\text{C}_{14}\text{-D-AlaA}$)-AMS 粒子 (B) の FE-SEM 像。

(図 4B)。粒子の直径は $0.1 - 0.5 \mu\text{m}$ 、長さは $1 - 3 \mu\text{m}$ で、 $(\text{C}_{14}\text{-L-AlaA})\text{-AMS}$ (図 4A)の粒子サイズとほぼ一致していた。粒子 300 個のねじれの向きを数えたところ、左巻き：右巻き = 25 : 75 であった。つまり、光学的に純粋で絶対配置が逆の界面活性剤を用いることで、正反対の不斉を誘起することを見出した。

キラルな分子を合成する触媒としては、均一系の分子触媒での成功例が多いが、反応場としてのメソ細孔表面のキラリティーを用いた全く新しい触媒・吸着材料が合成できれば、この分野のブレークスルーとなる可能性がある。キラルな AMS の不斉吸着材料としての可能性を検討した。 $(\text{C}_{14}\text{-L-AlaA})\text{-AMS}$ は L 体のアラニン誘導体を、 $(\text{C}_{14}\text{-D-AlaA})\text{-AMS}$ は D 体のアラニン誘導体を選択的に吸着し、光学分割に有意なレベルで成功した。

キラルシリカ合成方法の改良

上記したように、キラルなメソ細孔を有するメソポーラスシリカの合成に成功している。しかしながら、キラルメソポーラスシリカの合成は種々の合成条件の影響を受け易く、合成範囲は狭いことが課題であった。特に、界面活性剤の親水的頭部の構造、すなわち酸型(-COOH)と塩型(-COONa)の存在割合、が重要である。既報では、この存在割合を制御する為に合成溶液に NaOH と HCl を適量添加する必要があっただけでなく、ねじれた粒子以外にも球状粒子が生成してしまう問題があった。質の高いキラルメソポーラスシリカを得るために合成方法を改良を行った。その結果、合成溶液に NaOH と HCl の代わりに塩基性アミノ酸を添加することで質の高いキラルな AMS を容易に得られることを見出した。 L-Arginine (L-Arg.)と $N\text{-myristoyl-L-alanine}$ ($\text{C}_{14}\text{-L-AlaA}$)を含む水溶液に TEOS と TMAPS の混合物を加え、熟成処理を行った。XRD 及び N_2 吸脱着測定より、規則性の高い 2d-hexagonal 構造を有する AMS が得られたことを確認した。FE-SEM により、既報と比較して、均一なねじれた六角柱のロッド状粒子が多く見られた(図 5)。粒子の直径は約 $0.2\mu\text{m}$ 、長さは約 $1\text{-}2 \mu\text{m}$ 、ねじれのピッチは約 $0.4\mu\text{m}$ 、ねじれの向きは左巻き：右巻き = 77 : 23 であった。比較として、 L-Arginine の代わりに propylamine を加えた場合は、ねじれた粒子以外の粒子も比較的多く生成していた。適量のキラルな塩基性アミノ酸の添加は、界面活性剤の酸型(-COOH)と塩型(-COONa)の存在割合を制御しただけでなく、ねじれた粒子の形成を促進する効果があったと考えている。

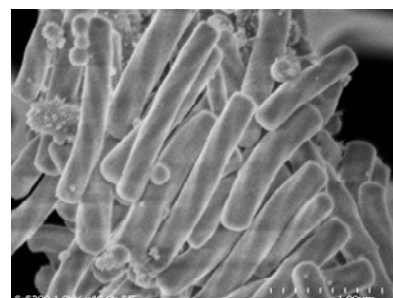


図 5 生成物の SEM 像

キラルな多孔質ハイブリッド材料

今年度、“アキラル”な界面活性剤を用いて、キラルな多孔質材料の調製に成功した。特筆すべきは、材料の組成である。従来はシリカ組成のみであったが、今回はシリカ骨格に有機基を導入したハイブリッド型シリカであり、機能材料へと展開可能である。この成果は *Angew. Chem. Int. Ed.* に「Hot paper」として掲載予定である。

(2)研究成果の今後期待される効果

カチオン性、非イオン性界面活性剤と比較して、アニオン性界面活性剤は一般的に安価であり、工業的にも広く使用されており、その種類も多い。よって、この成果は学術的だけでなく工業的にも意味のある成果であるといえる。アニオン性界面活性剤の親水的頭部構造のバリエーションによって、さらに新しい規則構造を生み出すことが出来ると期待される。キラルメソポーラスシリカの応用に関して、キラルな分子を合成する触媒としては、均一系の分子触媒での成功例が多いが、反応場としてのメソ細孔表面のキラリティーを用いた全く新しい触媒・吸着材料が合成できれば、この分野のブレークスルーとなる可能性がある。

3. 塩基性アミノ酸を用いた規則性シリカナノ粒子の合成 (東京工業大学 辰巳グループ)

(1) 研究実施内容及び成果

数 10～数 nm オーダーの金属あるいは金属酸化物の均一な粒子を自己組織的に三次元的に配列させることは、新規な機能の発現が期待でき大変興味深い。“自己組織化”の際に注目を浴びているのが、生体分子の利用であり、近年、材料合成において生体分子の利用が顕著である。辰巳 G はアミノ酸誘導体型アニオン性界面活性剤を用いることで規則性の高いメソポーラスシリカの合成に成功している。

辰巳 G、オルトケイ酸テトラエチルのようなアルコキシシランをシリカ源に用いた液相法によるシリカ粒子の合成において、リジンやアルギニンのような塩基性アミノ酸を溶解させた水溶液を用いた。走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察により、得られたシリカ生成物は、大きさが 12 nm 程度の均一な球状のシリカ超微粒子が規則的に配列して構成されていることが確認できた (図 6)。また、高分解能透過型電子顕微鏡 (TEM) より、この規則性シリカ粒子は立方細密構造 (Cubic-close-packed structure, ccp)、 $Fm-3m$ であることが判明した。以上、塩基性アミノ酸を用いる手法により、12 nm 程度の均一なシリカ粒子を形成・規則的に配列に配列させることに成功した。

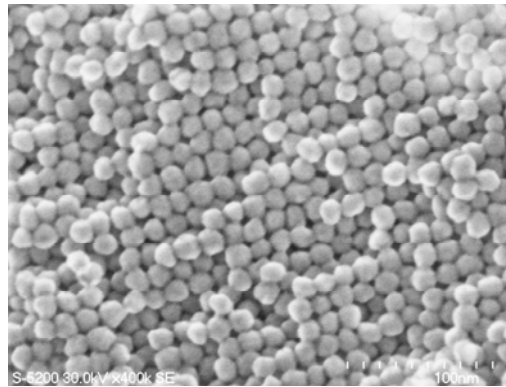


図 6 規則性に配列したシリカナノ粒子の SEM 像

(2) 研究成果の今後期待される効果

上記したように、我々が今回見出したシリカ粒子は、従来の Stöber 法により調製されるシリカ粒子 (サイズ: 100～300nm) とは一線を画す新しいシリカ材料であり、ナノ粒子分野に一石を投じるものと考えている。今後は、サイズの多様化、形態の多様化、成分の多様化を図る。現在、ナノ粒子状シリカ構造体を鋳型とし炭化、シリカ除去によるカーボンレプリカの合成に成功している。今後、得られたメソポーラスカーボンを鋳型として用い、種々の金属酸化物ナノ粒子の創製への展開が見込まれる。また、有機基導入による有機-無機ハイブリッド金属酸化物ナノ粒子、ヘテロ原子の導入されたナノ粒子の調製も期待できる。シリカナノ粒子の薄膜化なども期待できる。

3. 1 界面活性剤分子集合体-シリカ前駆物質複合体の構造変換機構の解明 (横浜国立大学 荒牧グループ)

(1)研究実施内容及び成果

界面活性剤テンプレート法によるメソポーラスシリカの合成では界面活性剤希薄溶液（ミセル水溶液）にアルコキシシランなどのシリカ前駆物質を添加する競奏的鑄型機構によるものが最も簡便である。この重合過程においては加水分解されたシリカ前駆物質がイオン間または双極子間相互作用により界面活性剤ミセル表面へ緩く濃縮され、やがてシリカの重合が始まると考えられる。重合が進むと単独のミセル表面上での反応ではとどまらず、隣り合うミセルをも巻き込んで重合が進み、最終的に界面活性剤濃厚系で形成されるリオトロピック液晶と類似の構造をテンプレートしたシリカが形成されると考えられる。我々のグループでは界面活性剤分子集合体-シリカ前駆物質の複合体の構造とその構造変換機構を明らかにすることを目的として以下の3項目について検討した。

1. 界面活性剤分子集合体の構造変換機構の解明

我々グループでは本プロジェクト以前の研究において界面活性剤の分子構造、親水性-親油性バランス、温度、濃度、可溶化される炭化水素の分子構造、水溶性のアルコール濃度などの変数を制御することにより球状のミセルから 2-d ヘキサゴナル、3-d ヘキサゴナル、ラメラなどの分子集合体構造の自在変換が可能であることを示してきた。本プロジェクトにおいては特に親水性のカチオン性、アニオン性、非イオン界面活性剤に親油性の非イオン両親媒性分子を加えることにより 1 次元方向に成長したひも状ミセルを形成することを明らかにできた。しかし、用いる界面活性剤の組み合わせによってはひも状ミセルは形成されないため、このような 1 次元方向へのミセルの成長は単に界面活性剤の親水性-親油性バランスを変化させる、あるいは臨界充填パラメータを変化させるだけではなく、親水基間の反発力の微妙的な制御を行なうことが重要であることが明らかになった。競奏的鑄型機構における分光学的研究において、シリカの重合反応過程において界面活性剤親水基からの脱水和が生じ、これにより界面活性剤親水基間の水和力による斥力が緩和され、球状からひも状への構造変換が生じる (Ruthstein et al., *J. Phys. Chem. B*, 107, 1739 (2004), *J. Am. Chem. Soc.*, 128, 3366 (2006))。さらに反応は進むと 2-d ヘキサゴナル構造や筒状のメソ孔が緩い規則構造で並んだ **disordered** 構造などのメソポーラスシリカへの構造変換が誘起される。すなわち、シリカを含まない界面活性剤系における界面活性剤分子集合体の構造変換とシリカの重合過程によるテンプレートの構造変換との類似性・関連性が示唆されており、後述の界面活性剤系の状態図を用いたメソポーラスシリカの構造デザインの着想の元となる成果を得た。

2. リオトロピック液晶-シリカ前駆物質複合体の構造変換機構に関する研究

辰巳グループにより報告されたアニオン性界面活性剤テンプレートを用いたメソポーラスシリカの合成系ではアニオン性界面活性剤にアミノシランを対イオンとして結合させたものをテンプレートとして用いている。我々はこれと類似の系におけるシリカの重合に伴うアニオン性界面活性剤の有機テンプレートとシリカ前駆体による複合体の構造変換について研究をおこなった。

水/ラウリン酸/3-アミノプロピルトリエトキシシラン (APTES) 系および水/ラウリン酸/3-アミノプロピルジエトキシメチルシラン (APDES) 系において小角 X 線散乱測定によりサンプル調製直後からの継時変化に伴うラメラ構造の変化を調べた。ラウリン酸/アミノシラン=7/3、水 50%において、ラウリン酸が形成するラメラ構造の長周期面間隔は時間経過とともに広がり、APTES を用いた系では 20 分後、APDES を用いた系では 10 時間後に面間隔の狭い別のラメラ構造体が新たに形成され、アルコキシシル基が少ない APDES を用いた系において反応時間が長くなるのがわかった。ラウリン酸のラメラ構造と新しいラメラ構造はしばらくのあいだ共存するが、十分時間が経つとラウリン酸のラメラ構造は消失し、新しいラメラ構造のみが

残る。この系における赤外吸収スペクトルにはアミノシランの加水分解により生成するエタノールの OH 基および Si-O 結合から生じる吸収ピークが存在し、その強度の対数を時間に対してプロットしたところ、この加水分解反応は一次反応であり、加水分解が生じたのちにシリカの縮合反応が生じていることがわかった。新しいラメラ構造体は時間経過とともにその面間隔を狭めたことと併せて考えると、ラウリン酸のラメラ構造の親水部近傍でアミノシランの加水分解、縮合が生じ、隣り合うアミノシランの分子間距離が縮まる。そのためにラメラ層間の水が構造体外部へ排出されたものがこの新しいラメラ構造体であると考えることができる。

さらに水/ラウリン酸/3-アミノプロピルトリエトキシシラン(APTES)/テトラエトキシシラン(TEOS)系において同様の検討を行なった。反応開始後 20 分程度までは前述の TEOS の無い 3 成分系と同様の結果を示したが、さらに反応時間が経過するとより面間隔の小さな第 3 のラメラ構造が現れた。3 つのラメラ構造は時間経過とともに順に消失していくことからラウリン酸のラメラ構造にシリカが配位・縮合をすることにより順次、より密に詰まった構造に転換されることがわかった。このことはシリカの縮合によって MCM-41 タイプのメソポーラスシリカ合成過程において観察されている分子集合体間が密に詰まる現象 (Ågren et al., *J. Phys. Chem.* **1999**, 103, 5943) の結果とも一致しており、アニオン性テンプレートを用いたメソポーラスシリカの生成機構も一般的なカチオン性テンプレートを用いた場合と同様であることを示唆している。

3. ミセル-シリカ前駆物質複合体の構造変換機構に関する研究

界面活性剤ミセル水溶液にシリカ前駆物質を添加することによる競奏的鑄型機構における無秩序構造から秩序構造への転移と界面活性剤水溶液系での界面活性剤の濃縮による無秩序-秩序転移には類似性がある。その類似性に着目し、シリカ前駆物質と界面活性剤分子集合体との複合体の構造変換の機構の解明とメソポーラスシリカの構造制御をテンプレートとなる界面活性剤自己組織体の構造制御により行なうことを目的として研究を行なった。界面活性剤としてポリ(オキシエチレン) コレステルエーテル (ChEO_n , $n=10, 15, 20, 24, 30$) を用い、その水溶液に水溶性のシリカ前駆物質であるテトラヒドロキシエチルオルトシリケート (THEOS) を溶解させ、60°C, 24h 反応後、沈殿物をエタノールにより洗浄し、シリカ粉末を得た。ピンホール型小角 X 線カメラ (リガク製 Nanoviewer) を用い、小角 X 線スペクトルを得て、シリカの構造を調べた。水/界面活性剤系において $n=10$ および $n=15$ ではミセル-rectangular 構造およびミセル-ヘキサゴナル構造転移を示すが、それらの系にシリカ前駆物質を添加した系において得られるシリカの構造も同様の構造転移を起こすことがわかった。

競奏的鑄型機構におけるミセル-シリカ前駆物質複合体の構造変換ダイナミクスはここ数年、放射光 X 線散乱 (Flodstroem et al., *Langmuir*, **2004**, 20, 4885)、時間分解 NMR (Flodstroem et al., *Langmuir*, **2004**, 20, 680)、cryo-TEM (Ruthstein et al., *J. Am. Chem. Soc.*, **2006**, 128, 3366)、EPR (Ruthstein et al., *J. Am. Chem. Soc.*, **2006**, 128, 3366)、時間分解蛍光消光法 (Zana et al., *Langmuir*, **1999**, 15, 2603) などの手法により明らかにされており、球状ミセルから棒状、ひも状ミセルと類似の構造へ変化し、それらが MCM-41 の 2d-ヘキサゴナル構造へ反応時間の経過とともに変化することが分かっている。これらは時間を変数として複合体構造を追跡しているが、我々は構造変換を誘起するシリカ前駆物質の濃度を変数として複合体構造の変化を追跡した。ポリオキシエチレンアルキルエーテル (C_{12}EO_n) 水溶液にテトラジヒドロキシエチルオルトシリケート (TDPOS) を添加し、その添加量を制御した反応物中の複合体構造解析を小角 X 線散乱法により行なった。構造体モデルを利用しない解析法である一般化逆フーリエ変換法により散乱曲線を解析したところ、 C_{12}EO_7 系では水溶性シリカ前駆物質の濃度増加に伴い界面活性剤ミセルの球状から棒状への伸長が確認された。一方で $\text{C}_{12}\text{EO}_{25}$ 系では水溶性シリカ前駆物質濃度によらず、ミセルの成長は一定の大きさで頭打ちになる事が確認された。シリカ前駆物質を含まない C_{12}EO_7 水溶液系では界面活性剤濃度増加とともにミセルからヘキサゴナル相転移、 $\text{C}_{12}\text{EO}_{25}$ 水溶液系ではミセルからミセルキュービック相 (球状ミセルからなるキュービック相) 転移が生じる。この結果からも界面活性剤水溶液系の濃度による構造変換と競奏的鑄型機構におけるメソポーラスシリカの生成が類似の機構で進んでいることが示唆された。

(2)研究成果の今後期待される効果

我々のグループでは界面活性剤の分子集合体の構造制御に関する研究を本プロジェクト以前より行なっており、電解質、炭化水素、アルコールなどの添加とそれらのイオン半径や分子量、極性などをコントロールすることにより、分子集合体の構造制御を行なうことが可能であることを示してきた。本プロジェクトにおいては水溶性のシリカ前駆物質を利用することにより、シリカ前駆物質を界面活性剤分子集合体構造制御のための添加物の一つとして考えることにより、従来の知見を生かしてメソポーラスシリカの構造形成機構を解明することができた。比較的新規である水溶性のシリカ前駆物質の利用によって、シリカ合成系を均一な溶液として得ることができ、小角X線散乱法や動的光散乱法などの従来から界面活性剤分子集合体構造の解析に用いている手法を利用して界面活性剤テンプレートとシリカ前駆物質の複合体の構造変換機構を明らかにすることができた。また、界面活性剤の濃度変化とシリカの重合過程との類似性を示すことができ、メソポーラス材料の構造デザインを界面活性剤系の状態図を用いて行なうという新しいコンセプトを示すことができた。これらの成果により今後メソポーラス材料の構造デザインをより精密に行なうことが可能になるものと期待できる。

また、副次的な成果として、界面活性剤ミセルを含むハイドロゲルの合成がある。界面活性剤系の状態図を作成する要領でメソポーラスシリカ合成系を検討することによりメソポーラスシリカを得る場合には界面活性剤/シリカ前駆物質比率や濃度がある一定の範囲内でのみ可能であり、それ以外の「適性濃度」の範囲外では弾性的なゲルとなることが分かった。このハイドロゲル中には界面活性剤ミセルという疎水的なナノドメインが存在するため、水に難溶性の有用物質を可溶化したハイドロゲルを得ることができる。このハイドロゲルについては医薬品・化粧品などへの実用的な展開が期待できる。

3. 1 メソポーラスシリカへの有機官能基修飾法の開発と構造解析、オキシアニオンとの相互作用の解明 (横浜国立大学 吉武グループ)

(1) 研究実施内容及び成果

メソポーラスシリカ合成後に反応性有機シランによって官能基を導入するグラフト法とシリカ前駆体と官能基を有するシランを界面活性剤ミセル存在下で脱水縮合させ、メソ構造を得る直接合成法（共縮合法）を比較して、前者では官能基が表面露出するものの、その分布がメソポーラスシリカ中で一様ではなく、後者では官能基の分布は一様と考えられるものの、全部が表面に露出するわけではないことを示した。

グラフト法による官能基の空間分布は、メソポーラスシリカのメソ構造に依存することを示した。これは細孔径および細孔連結構造の双方がそれぞれ関与することを MCM41, MCM48, SBA1, SBA15 などのメソポーラスシリカを用いて明らかにした。

アミノアルキルシラン類をグラフトしたメソポーラスシリカによるヒ酸イオン、クロム酸イオンの吸着において、官能基の構造、メソ細孔構造の効果を明らかにした。また配位結合を通して Fe, Co, Ni, Cu などの遷移金属イオンを導入し、As, Cr, Se, Mo などのオキシアニオンの吸着強度、吸着量がどのように変化するか、様々な組み合わせ（3 金属イオン、4 アニオン、3 アミノアルキル、4 メソポーラスシリカ）について明らかにした。ヒ酸やモリブデン酸は Fe^{3+} が中心イオンとなっている構造、クロム酸は Cu^{2+} が中心となっている構造がそれぞれ強度、容量共に大きな値を示した。またアミノアルキル基に関しては、エチレンジアミン型配位子を持つシランを高密度で存在させた時に、容量の上で良い結果が得られた。

これらに関しては、現在良好な吸着剤が存在しないオキシアニオン吸着剤に用途があると考え、環境中の共存アニオンとの共吸着、リサイクル性などを検討した。強く吸着するという事実と、再度吸着したオキシアニオンを表面から脱離させることが両立することを示した。

メソポーラスシリカ表面に官能基をできるだけ高密度に結合させる方法として、界面活性剤ミセルの頭部と有機シラン官能基を直接結合させた状態で直接合成をおこない、ミセルを除去する方法を開発した。(functionalization in association with templating) これはアミノアルキルシランのような直接合成が良好な結果を与えない場合、アニオン性界面活性剤ミセルを用いると、シリカ酸化物水酸化物とはアニオン性界面活性剤ミセルの相互作用が小さいため、特に有効である。さらに極限まで官能基密度を上げたアミノプロピルシリケートを合成した。ただしこの物質は細孔性ではなく、原子レベルの薄層シートの集合体である。低次元性固体だが、組成式が書ける化学量論性物質なので、オキシアニオンの吸着現象の基礎的な研究に相当である。

3. 2 メソポーラスチタニア担持遷移金属触媒の合成と構造解析、酸化触媒作用の解明 (横浜国立大学 吉武グループ)

(1) 研究実施内容及び成果

長鎖アルキルアミンを型剤に合成されるメソポーラスチタニアはその高表面積---全体の 80% 程度が表面に露出---のため、メソ骨格内構造は非晶質であり、結晶では表面にしか存在しない 5 配位 Ti が全体の 4 割ほど存在することを明らかにしていたので、これを触媒担体として研究を進めた。バナジウムを直接合成法により導入した触媒では、室温大気下でバナジウムはほぼ全て 4 価であることを XANES, ESR で明らかにした。含浸触媒では、5 価も観測された。結晶性チタニア担持 V 触媒ではこの条件下では、4 価は検出されないため、メソポーラスチタニアは活性点の酸化還元ポテンシャルを大きく変えていると結論された。このバナジウムの酸化触媒作用を調べるためオレフィンを酸素で燃焼させたところ、メソポーラスチタニア担持触媒では、従来の担体を用いた触媒の 20 倍近い活性が得られた。

モリブデンやタングステンを同様の方法で導入した場合、それらの原子の局所構造は、P-25 担体に担持した場合と大きな違いはなく、触媒作用も（活性が1桁以上も異なるような）極めて大きな差は認められなかった。

直接合成セリウム担持触媒では、メソポーラスチタニア担持触媒では室温大気下でセリウムはほとんど3価であった。一方P-25 担持セリウム触媒では、ほとんどのセリウムは4価であった。バナジウムの場合と同様、メソポーラスチタニアはセリウムの酸化数を下げていることが明らかになった。バナジウムもセリウムもこれらの構造が高表面積チタニアに起因するのではなく、メソ細孔構造を与える二酸化チタンの局所構造に起因することは、型剤なしで合成した触媒では、P-25 担持触媒とそれぞれ同じ酸化数を与えたことから確認した。メソポーラス担持セリウム触媒ではエタノール-酸素反応の選択性が、P-25 担持触媒と全く異なった。

(2)研究成果の今後期待される効果

有機官能基を有するシリケートメソ構造体は、メソ細孔の制御と官能基間距離・配向の制御と組み合わせ、有機的に機能させることが可能なため、分子認識能発現による高度物質分離への研究へと発展する予定である。この物質系は基体が無機酸化物で「固く」作用点周辺が有機物で「柔らかい」という点で、無機固体表面とも高分子性物質とも作用機序が異なる。このため吸着現象等において、特異性が見出される可能性が高い。

メソポーラスチタニアをはじめとするメソポーラス遷移金属酸化物は、非晶質などバルクの構造が異なっている場合において、従来とは大きく異なる機能をもたらすことが明らかになりつつある。ただし、非晶質として調製した担持触媒を結晶化すると新しい物質系が得られるので、局所、メソ構造についての検討やそれらの機能に関する検討からは新しい知見が得られる。選択酸化反応、部分酸化反応に関して特異的な触媒作用が見出されるものと考えている。

3. 1 構造複合によるゼオライト・ナノポーラス構造制御と触媒反応への応用 (北九州市立大学 浅岡グループ)

(1) 研究実施内容及び成果

ゼオライト・ナノポーラス構造の合成条件を精密かつ詳細に検討し、それらの構造間での複合の条件と複合の均一度を観察する。具体的には、ナノポーラスな外表面構造を有する MWW (MCM-22) ゼオライトと他のゼオライトとの複合化の合成条件を、アニオンの種類、添加有機物質、共存電解質の効果、組成比、濃度、温度プログラム、合成時間などの因子について検討する。これらの知見からゼオライト・ナノポーラス構造複合化についての手がかりを得る。また、「構造変換によるゼオライト・メソポーラス構造制御グループ (辰巳グループ)」と連携して、メタロシリケートについても、複合化を試み、環境関連技術でのゼオライト・ナノポーラスに起因する物理的性質や触媒特性について単一ゼオライト構造のメタロシリケートと比較し複合化の効果を明らかにする。

ゼオライト構造間での複合が起きる調製条件の探索として、MCM-22 (MWW ゼオライト) と他のゼオライトの複合化を試みた。

触媒成分として有用な代表的ゼオライトである ZSM-5 (MFI) 系および MCM-22 (MWW) 系について、中位の結晶性のゼオライトを合成するための制御因子を検討した。工業的に固体酸触媒成分として有用なゼオライトである Y 型、ベータを中位のゼオライト的酸性を反応の場として持ちかつナノポーラスなアクセスの場を持つ触媒系として調製する方法を検討した。

ZSM-5 (MFI) ゼオライトに関しては、①母ゲルの Si/Al をテンプレート一定ないしテンプレート/Al 比一定として合成することによって任意の Si/Al 比で中位のゼオライトが合成できることを確認した。②Si/Al=45 付近がもっともコントロールしやすかった。③特に Fe を添加によって結晶サイズを小さくできた。MWW ゼオライトに関しては、他のゼオライトとの構造複合が起きる調製条件を含めて、中位結晶性ゼオライトの合成は、①MCM-22 と他のゼオライトが複合化する MCM-22 生成領域の境界付近での調製、②有機テンプレート剤の複合使用、③種 (シード) の利用、④有機テンプレート不均化剤 (例えば PTFE) によるゼオライト合成場 in situ マイクロリアクター化などで実現できた。工業的に固体酸触媒成分として有用なゼオライトを、中位のゼオライト的酸性を反応の場としてもちかつナノポーラスなアクセスの場をもつ触媒系として調製する方法について明らかにした。

工業的に触媒成分として有用な代表的ゼオライトである ZSM-5 (MFI) 系およびベータ (BEA) について、合成において結晶子サイズを制御することによってナノポーラス構造の賦与を試みた。Y (FAU) およびベータについては加工によってナノポーラス構造を創生することを試みた。このようにして得られたナノポーラス構造を有するゼオライトをナノポーラスアルミナと複合化することによって触媒素材とした。これを用いた協奏的触媒作用を発揮する反応系を検討した。

その結果、構造複合によるゼオライト・ナノポーラス構造制御による協奏的ナノ触媒 (担持作用を含む) の具体的な反応例としては以下の 5 つが明らかとなった。

- ① 「深度脱硫 (難脱硫性化合物の反応) /水素化分解」
- ② 「長鎖パラフィンの分解・異性化による軽質イソパラフィン合成」
- ③ 「H₂O、O₂ 存在下での N₂O の分解」
- ④ 「メタノール/DME からプロピレンの選択合成」
- ⑤ 「パラ置換体の液相選択合成」

(2)研究成果の今後期待される効果

ゼオライト合成場 in situ マイクロリアクター化、および中位のゼオライト的酸性を反応の場としてもちかつナノポーラスなアクセスの場をもつ触媒系として調製する方法の 2 つの創造的技術に基づくナノポーラス複合触媒を用いて、環境技術、地

球環境的エネルギー技術、環境調和型化学プロセスへの戦略的技術適用が図れる。

構造複合によるゼオライト・ナノポーラス構造制御による協奏的ナノ触媒の適用例を増えるとともに、広く適用できる技術として期待できる。

3. 1 ナノ空間の特異性を活かしたグリーンプロセスの開拓 (東京工業大学 岩本グループ)

(1)研究実施内容及び成果

1. (1) 新しい固体酸触媒反応系の構築

本研究申請時に、シリカがナノ空間を形成した場合にのみ特異な固体酸機能が発現し、アセタール化反応やカルボン酸によるフリーデルクラフツアシル化反応が進行することを報告していた。本研究ではこの酸触媒能を種々の有機合成に拡張し、これまでの酸触媒とは異なる反応が進行することを認めた。まず、アルキル化反応が収率よく進行した。この時、少量の塩基性化合物を添加すると収率がさらに向上することを認め、その結果から活性な酸点の量を推定した。向山-アルドール反応においては、アセタールの方がアルデヒドよりも高い反応性を示すことを見出した。これは、一般的な反応性序列と全く逆である。ディールスアルダー反応ではナノ細孔の効果と Al 含有量の効果を識別して測定することに成功した。

本研究ではさらに、炭素-炭素二重結合の酸化的水和を検討し、2-メチルインデンや 1-アリールシクロヘキセンオキシドからシスジオールを高収率で得ることができた。高選択性発現には低極性溶媒が有効で、水の添加量は少ないほど有利であった。均一系酸触媒反応では電子供与基が置換している場合のみシス体が主成分となるが、本反応系では置換基の電子供与性/吸引力によらず高いシス選択性が発現した。本反応は種々の反応に拡張でき、例えば求核剤としてアルコールを用いた場合にも高シス選択的付加が進行すること、その結果は均一系触媒反応を超えることを見出している。以上、本研究で見出した固体酸機能は従来の酸塩基概念では予測できない新規なものであること、この機能を利用するとこれまでは超強酸触媒を要求していた反応さえ実施可能なことが明かとなった。

(2) 固体触媒による不斉合成、分子認識能の付与

ナノ細孔内の均一表面を反応場とする不斉固体触媒の実現に挑戦し、本研究申請時に Ti-M41 を触媒とするスルフィド酸化系で酒石酸存在下、スルフォキシド収率 54%、不斉収率 30%ee を得ていた。本研究では反応条件、修飾剤の種類、量等を検討し、不斉発現に水の共存が必須、酒石酸構造の 位の置換基の構造が不斉発現に極めて需要、タートラニル酸が最も有効で不斉収率 58%ee に達することを結論した。

次に、Cu-M41 による不斉シクロプロパン化を検討した。ジアゾ化合物によるシクロプロパン化は速やかに進行し、反応系にビスオキサゾリンを加えると、得られた trans-体に 70%程度の不斉誘起が観測された。活性種が液相に溶出しないうこと、不斉固体触媒として再使用できることは別途確認した。触媒中に存在する銅量のわずか 1/4 程度 (モル比) の修飾剤の添加で十分な ee 値が得られた。また、修飾剤の置換基効果が均一系と不均一系で大きく異なることを見出した。今後、活性点構造の解析を進め、さらに高性能の不斉固体触媒を開発したい。本研究により、固体触媒上の活性点による不斉合成が現実のものとなり、その不斉発現機構は均一系とは大きく異なっていることが結論された。

3. 2 ナノ集積による新しい機能・触媒能の創出 (東京工業大学 岩本グループ)

(1)研究実施内容及び成果

(1) 新機能物質の創製

我々は以前非シリカ系のメゾ多孔体の新規調製法として酸素酸アニオン交換法 (壁イオン交換 WIE 法) を開発し、Zr-P 系の複合酸化物多孔体を調製した。本研究ではこの方法を応用し、Zr-W、Zr-Cr 等の複合酸化物系でシリカ系に匹敵する高表面積多孔体を調製できた。WIE 法は新規な複合酸化物多孔体の調製に応用可能で、

従来の中性界面活性剤法よりもはるかに高表面積を達成できる方法であることがわかった。

本研究では本法をさらに拡張し、有機-無機複合メゾ多孔体の調製を試みた。即ち、WIE法の交換アニオンとしてフェニルフォスホン酸イオンを用い、交換時のpH、交換量、界面活性剤の抽出法等を系統的に検討した。その結果、Zrに対してフェニル基を30%（モル比）含有する有機-無機複合多孔体の調製に成功した。比表面積は500 m²/gに達した。この新物質は上記のZr-P多孔体よりもはるかに優れた耐水性を示した。以上、シリカ系でも達成できていない特性が実現したので今後さらに展開していきたい。

一方、当グループでは他の事象を検討中、結晶性有機化合物がシリカメゾ多孔体の細孔内に拡散する現象を発見した。M41-ピレン混合系でこの現象を詳細に検討し、メゾ細孔内に固体有機分子が容易に拡散すること、ピレン分子はほぼ結晶状態で細孔内に充填されることを結論した。この固相拡散現象を利用すれば、特異な無溶媒固相触媒反応が進行する可能性がある。実際、1,1,2-トリフェニルエタン-1,2-ジオールの固相ピナコール転位反応が進行し、その生成物分布が均一系と大きく異なることを認めた。固相反応系では、溶媒反応と異なり、中間生成物の収率を格段に向上させるのに有効なようである。

（2）金属イオンとの協奏効果を利用した新触媒系の構築

金属イオン担持系での反応は溶液系と気相系で検討した。溶液系では、(1) Cu-M41を触媒としてジアゾ化合物とカルボニル化合物から温和な条件で環状エーテル類が合成できた。均一系で活性なCu(OTf)₂は本条件下では生成物を全く与えなかった。(2) ジヒドロピリミジノン類は1,3-ジカルボニル化合物、アルデヒド、尿素の三成分反応（Biginelli反応）により合成される。本研究では1,3-ジカルボニル化合物がAl-M41触媒により高収率で合成できることをまず確認し、これをBiginelli反応系に組み込んだ。その結果、先例のない四成分縮合によるジヒドロピリミジノン類合成をAl-M41上で達成できた。活性はSi/Al=30を頂点とする山型を示した。活性発現にAlとメゾ細孔の共存が必要であることを確認した。

気相反応系ではNi-M41を中心に検討した。この触媒上でエチレン→プロピレン反応が進行することは本研究申請以前に見出していた。本研究では、UV-VIS、昇温還元、XANES、ニッケルアンミン錯体吸着法、速度論的検討からNiが八面体配位をとること、反応はメタセシスを経由して進行していることを究明した。

本研究者はエチレンの代わりにバイオエタノールを用いることを着想した。即ち、アルコールの脱水反応は典型的な固体酸反応であるので、Ni-M41を用いるとバイオエタノール→低級オレフィンの選択的転換が可能になると考えた。実際、M41上でのC2-C4アルコールの脱水反応、Ni-M41上でのエタノール→低級オレフィンとともに99%超の収率で進行した。驚いたことに本反応は空間速度20,000h⁻¹でも収率よく進行する超高速反応であった。本反応ではエタノールの脱水反応、生成したエチレンの二量化、異性化、メタセシスが進行していると考えている。本反応系を用いると、バイオエタノールを燃料ではなく高分子化合物原料として利用でき、CO₂を長期間固定できることになる。この点が高く評価され、本プロセスは平成20年度から経産省、農水省合同の国プロに採用される予定である。

3. 3 外部刺激応答型触媒 (東京工業大学 岩本グループ)

(1)研究実施内容及び成果

(1) 量子サイズ効果触媒

種々の酸化物微粒子をナノ多孔体内で調製すると量子サイズ効果によってバンドギャップを変化できることを既に報告している。本研究ではそれを利用して酸化チタンや硫化カドミウムを用いない新しい光触媒系の構築を試みた。実際に実験したところ、超微粒子が水中で光溶解を起こし、安定な光触媒系を構築するのは極めて困難であることがわかった。現在、この研究は中止している。

(2) 新しい光機能化学・材料

本研究では、ジアリールエテン (DE) の光異性化反応の量子効率向上にシリカメゾ多孔体への担持が極めて有効であることを見出した (約 4 倍の高効率化を達成)。これは細孔内で DE がパラレル構造をとりにくいためである。光異性化制御のための新方法を提案できたと考えている。

次に、アゾベンゼン分子を細孔内に放射状に配置し、光異性化による細孔径可変の可能性を検討した。p-トリエトキシシリルアゾベンゼンを M41 内に担持すると細孔径が可逆的に変化し、その変化量は約 1 nm であること、アゾベンゼン基の最適表面密度は約 0.9 個/nm² であることが明らかになった。この研究の過程でマロノニトリル系のプローブ分子の UV 吸収波長が細孔径によって変化する新事象も見出した。現在、この光圧力を種々の化学反応あるいは物性制御へ適用する研究を遂行中である。

(2)研究成果の今後期待される効果

Ni-M41 の触媒作用 (エチレンの反応およびバイオエタノールプロセス) は世界中の注目を集め、本年 9 月初旬に開催されるマイクロ・メゾ多孔体触媒会議、来年 4 月にニューオーリンズで開催されるアメリカ化学会で岩本にそれぞれ基調講演、招待講演の依頼があっている。さらに、本反応系は平成 20 年度からは経産省と農水省合同の国家プロジェクトに採用される予定である。このプロジェクトへの協力企業は 5 社を数える。また、トタル (仏)、BP (英) からは視察団の訪問を受け、国際共同研究の申し込みがあったが、前記の国プロとの関係で実施には至っていない。

一方、シリカメゾ多孔体の固体酸機能についても企業の大きな注目を集め、これまでに 7 社 (住友化学、三井化学、出光興産、旭化成、昭和電工、ダイセル化学工業、東京化成) に対して調製法等の技術指導を行った。この固体酸機能は従来型の酸ではうまく進行しない反応を収率よく進行させたり、逆に当然うまく行かずの反応が進行しなかったりする。この機能発現の理由は現在も検討中であるが、これまでの概念では計れない新規な機能を発見できたと考えている。

上記と関連するが、新規な酸触媒作用と細孔による中間体安定化効果を適切に組み合わせ、これまでは困難であった反応系を実現することにも成功しつつある。例えば、炭素-炭素二重結合の選択的シスジヒドロキシル化、無溶媒法による不安定中間生成物の選択的合成等である。これらの検討をさらに進めることにより、均一錯体系触媒、酵素等の極めて精密な合成反応系に迫るあるいは凌駕する触媒反応系を構築できると期待している。

以上、シリカナノ多孔体の研究は世界中で実施されているが、当研究室では高表面積、大細孔径等を単純に利用する研究は一切行っておらず、ナノ多孔体ならではの機能創出・発見に成功している。このため TIE 法、固体酸機能、Ni-M41 等、当研究室の成果に追随する研究が世界で開始されつつある。本研究グループの成果は世界をリードしていると考えている。

3. 1 規則性シリカナノ空間と分子触媒のシナジー効果 (横浜国立大学 窪田グループ)

(1)研究実施内容及び成果

[実施内容]

細孔内にアミノ基を含む有機 - 無機ハイブリッドメソポーラスシリカは、ナノ空間内でアミノ基の有する高い反応性(固体塩基触媒能や金属カチオン配位能等)が利用でき、活発な研究が行われている。本研究では、アミノ基含有メソポーラスシリカをアニオン性およびカチオン性界面活性剤を用いて共縮合法により合成し、両者の物性および触媒性能を比較検討することを目的とした。さらに、OFMS (= organic-functionalized molecular sieves) 型触媒と SOCM (= silicate-organic composite materials) 型触媒の性能比較も行った。

[実施方法]

アニオン性界面活性剤として $C_{11}H_{23}COONa$ (LAS)、カチオン性界面活性剤として $C_{16}H_{33}N(CH_3)_3Br$ (CTMABr)を用い、Si 源として $(EtO)_3Si(CH_2)_3NH_2$ (APS)と $(EtO)_4Si$ (TEOS)の混合物[APS の分率 x (mol/mol) = $APS/(APS+TEOS)$]を用いてアミノ基含有メソポーラスシリカ AMS (x -APS-AMS) 及び MCM-41 (x -APS-MCM-41)をそれぞれ合成した。

活性評価のプロープ反応として、benzaldehyde と ethyl cyanoacetate の Knoevenagel 縮合反応を用いた。両成分の等モル混合物のトルエン溶液に触媒を加え、所定温度で攪拌した。反応後、触媒をろ別し、ろ液より生成物 ethyl α -cyanocinnamate を単離した。

[成果]

XRD、TEM、 N_2 吸脱着測定によりメソ構造規則性に関する考察を行った。AMS では均一なメソ細孔が不規則に配列していることが分かった。 $x=0.3$ のとき、回折強度は最大となり、比表面積は最大になった ($660\text{ m}^2/\text{g}$)。MCM-41 では、 x の増大と共に構造規則性は低下し、比表面積も減少した。

アミノ基の導入状態に関して、 ^{29}Si MAS-NMR、CHN 元素分析、AgCl 滴定等を用いて総合的に考察した。例えば、生成物中における $T^n/(Q^n+T^n)$ 値は 0.3-APS-AMS は 0.27、0.3-APS-MCM-41 は 0.20 と差が見られた。また実際に導入されたアミノプロピル基のうち、0.3-APS-AMS では 94 %が細孔表面に露出しているのに対し、0.3-APS-MCM-41 では 85 %であった。アミノ基の表面密度は 0.3-APS-AMS では 1.9 nm^{-2} 、0.3-APS-MCM-41 では 0.9 nm^{-2} と見積もられた。AMS の合成では界面活性剤の頭部とアミノ基の直接の相互作用を利用しているので、アミノ基がシリカ壁に埋もれることなく表面に均一に分布した修飾型メソポーラスシリカを得ることができたと考えられる。

合成法の違いによるアミノ基の活性の違いを検討するため Knoevenagel 縮合反応を行った。Fig. 1 に示すように、APS-AMS は APS-MCM-41 よりもはるかに高い活性を示

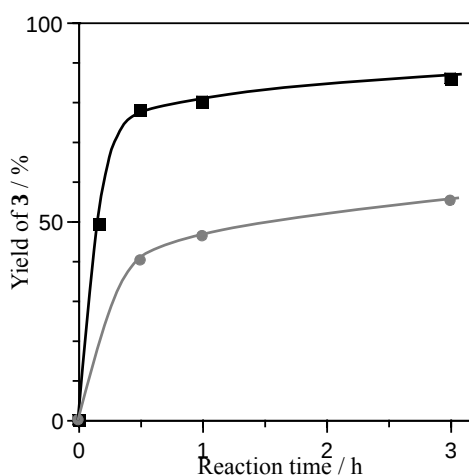


Figure 1 Time-course of the Knoevenagel condensation of benzaldehyde with ethyl cyanoacetate catalyzed by (a) 0.3-APS-AMS and (b) 0.3-APS-MCM-41.

した。細孔表面に露出しているアミノプロピル基の割合から期待される以上に大きな差が出ていることから、表面シラノールの露出度の他に、アミノプロピル鎖のジオメトリーが複合的に関与していることが示唆された。

上記の APS-AMS および APS-MCM-41 は、OFMS 型触媒（有機基固定化 MCM-41 など）の一つであるが、カルコンとマロン酸エステル Michael 反応に対しては極性溶媒中でしか活性を示さない。これに対し、SOCM 型触媒（四級アンモニウム・シリケート複合体）は特に非極性溶媒中で有用であった。つまり両触媒が相補的な特長を有することが明らかとなった。

(2)研究成果の今後期待される効果

これまでのモデル系での検討により、OFMS 型および SOCM 型触媒の挙動がわかってきた。機能性材料の原料となる含フッ素化合物への適用も可能であり、実用的な展開が期待される。また予備的な検討によれば、光学活性なジアミンを固定化したシリカゲルで有望な不斉触媒能が発現している。この系を規則性多孔体に拡張すれば、不斉触媒としての高性能化が期待できる。

3. 2 高度に設計された有機の構造規定剤を駆使したマイクロ・メソ秩序構造物質の創製

(横浜国立大学 窪田グループ)

(1)研究実施内容及び成果

[実施内容]

本プロジェクトでまだ手がつけられておらず、最近注目されているものとして、12 員環と 10 員環が交差した細孔をもつゼオライト類がある。これらはゼオライトの中では比較的広い反応場を提供し、触媒活性点濃度のレンジが広く、安定性が高いことから、主として 6 員環～7 員環の有機化合物が関わる反応の触媒として有望である。

MCM-68 (MSE トポロジー) はまっすぐな 12 員環 (0.67 nm) と 2 つのうねった 10 員環 (0.50-0.55 nm) のチャンネルが交わった 3 次元大細孔ゼオライトである。まだあまり認知されていないが、Mobil 社によってアルキル化用酸触媒として盛んに研究開発が進められている新型ゼオライトである。我々も当初 Mobil 社の方法で合成を試みてきたが、その過程で合成条件の許容範囲が極めて狭いことが判明した。具体的には、骨格にアルミニウムを含む Al-MCM-68 としてのみ結晶化し、その Si/Al 比は 9～12 程度に限定される。このことを逆手にとり、比較的多く含まれる Al を Ti で置換できれば、高濃度の Ti を骨格に含む Ti-MCM-68 の合成が可能と期待される。

本研究では、第一に Al-MCM-68 のポスト処理による Ti-MCM-68 の合成と、過酸化水素を酸化剤とするオレフィンのエポキシ化触媒への応用を目的とした。第二に、乾燥ゲル転換 (DGC) 法という比較的新しい手法を用い、新規なゼオライト構造の創製を目指した。

乾燥ゲル転換 (DGC) 法という比較的新しい手法を用いた合成を試みたところ、従来とは全く異なるゲル組成で MCM-68 に類似した新規骨格が得られた。

[実施方法]

コロイダルシリカ、 $R^{2+}(I)_2$, KOH, $Al(OH)_3$, H_2O を混合し、室温で 3 時間攪拌後、オートクレーブ中 160°C で 16 日間静置した。ゲル組成比は $SiO_2-0.1R^{2+}(I)_2-0.375KOH-0.1Al(OH)_3-30H_2O$ とした。その後、空気雰囲気下、600°C で 5 時間焼成し、次いで 6 M 硝酸で脱アルミ処理を行った。この脱アルミサンプルに $TiCl_4$ を含んだ Ar ガスを 600°C で 2 時間流通させ、Ti-MCM-68 を得た。キャラクタリゼーションは XRD, UV-Vis, ICP 等を用いて行った。

反応は、1-ヘキセンをアセトニトリルに溶解し、上記の Ti-MCM-68 と過酸化水素水 (31 wt%) を加えて、60°C で 2 時間攪拌することにより行った。反応溶液を GC で定量分析し、未反応の過酸化水素をセリウム塩滴定法により分析した。

[成果]

Ti-MCM-68 の粉末 X 線回折パターンからチタン処理後も MSE 構造が保たれていることがわかった(Fig. 1)。また、UV-Vis により、効率よく骨格内にチタンが導入されていることを確認した。1-ヘキセンのエポキシ化反応の結果を Table 1 に示す。3 次元細孔骨格を有するチタノシリケートゼオライトとして、従来知られている TS-1, Ti-Beta の 4~7 倍高い活性を示し、エポキシ体の選択率も非常に高かった。Ti-MCM-22 とは同等であったが、特殊な骨格変換処理を経由しない通常のゼオライト骨格としては、これまでに無い高い性能であった。Ti-MCM-68 はシクロヘキセンに対しても高い活性と選択性を示した。TS-1 は本来の活性が高いものの、10 員環であるが故にシクロヘキセン程度の嵩高さには対応できない。一方、Ti-Beta は嵩高さには対応できるものの、本来の活性が低く、また Ti が溶出しやすい。Ti-MCM-68 は両者の欠点を克服した有用な触媒と言える。

これに加えて従来とは全く異なるゲル組織でMCM-68に類似した新規複合体および新規骨格を得ることに成功し、それぞれ YNU-2P および YNU-2 と命名した。

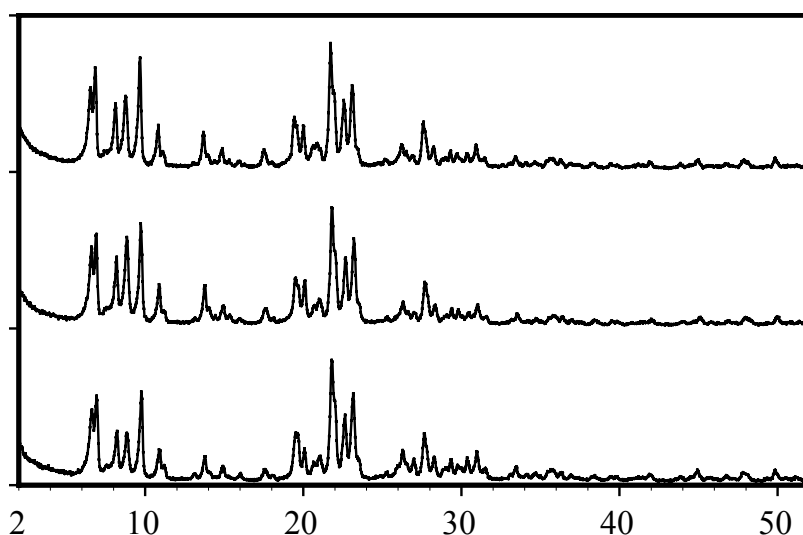


Fig. 1 XRD patterns of (a) Al-MCM-68, (b) De-Al-MCM-68 and (c)Ti-MCM-68.

Table 1 Epoxidation of 1-hexene with H₂O₂ over various titanosilicates

Catalyst	Si/Ti	Conv. (%)	Selectivity (%)		TON	H ₂ O ₂ (%)	
			Epoxide	Diol		Conv.	Eff.
Ti-MCM-68	82	28.7	>99	0	285	32.5	88
TS-1	36	16.5	98	2	69	19.0	87
Ti-Beta	40	8.6	97	3	40	9.8	88

Reaction conditions: 1-hexene, 5 mmol; H₂O₂, 5 mmol; catalyst, 25 mg; MeCN, 5 mL; temperature, 60 °C; time, 2 h.

(2)研究成果の今後期待される効果

上記の Ti-MCM-68 合成法および DGC 法を利用した新規複合体 YNU-2P の合成法のいずれも、再現性が高く比較的簡便な方法なので、試料の安定供給が可能となっている。並行して進めている精密構造解析の結果と合わせることで、「構造-活性相関」の解明とそれに基づく触媒設計の可能性が拓がると考えられる。

4 研究参加者

辰巳 敬グループ

(構造変換によるゼオライトのナノ空間制御と触媒反応への応用、アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカの合成と応用、塩基性アミノ酸を用いた規則性シリカナノ粒子の合成に関する研究)

氏 名	所 属	役 職	研究項目	参加時期
辰巳 敬	東京工業大学 資源科学研究所	教授	研究全般の総括および規則性無機多孔体と有機物との相互作用を駆使した、無機多孔質構造を自在に制御する方法の確立、およびファインケミカルズ合成プロセスにおけるグリーン触媒の創製	平成 14 年 11 月～ 平成 20 年 3 月
横井 俊之	東京工業大学 資源科学研究所	助教	アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカの合成と応用、及び塩基性アミノ酸を用いた規則性シリカナノ粒子の合成	平成 16 年 12 月～ 平成 20 年 3 月
稲垣 怜史	東京工業大学 資源科学研究所	助教	構造変換によるゼオライトのナノ空間制御と触媒反応への応用	平成 17 年 4 月～ 平成 20 年 3 月
樊 エ斌	東京工業大学 資源科学研究所	J S T 雇 用の研究 員	構造変換によるゼオライトのナノ空間制御と触媒反応への応用	平成 16 年 7 月～ 平成 19 年 10 月
岩根 和子	東京工業大学 資源科学研究所	J S T 雇 用のチー ム事務員	研究領域、グループ全 般に関する事務	平成 16 年 4 月～ 平成 20 年 3 月

國枝グループ・荒牧グループ

(界面活性剤-シリカ複合分子集合体の構造変換機構の研究)

氏 名	所 属	役 職	研究項目	参加時期
國枝博信	横浜国立大学 大学院環境情報研究院	教授	研究全般の総括および界面活性剤分子集合体およびシリカとの複合体構造解析	平成 14 年 11 月～ 平成 17 年 11 月
荒牧賢治	横浜国立大学 大学院環境情報研究院	准教授	研究全般の総括および界面活性剤分子集合体およびシリカとの複合体構造解析	平成 14 年 11 月～ 平成 20 年 3 月
Rodriguez Carlos	横浜国立大学 大学院環境情報研究院	外国人客 員研究員	界面活性剤分子集合体およびシリカとの複合体構造解析	平成 14 年 11 月～ 平成 16 年 6 月

吉武グループ

(メソポーラス酸化物の自在変換と触媒、吸着材の研究)

氏 名	所 属	役 職	研究項目	参加時期
吉武英昭	横浜国立大学 大学院工学研究 院	准教授	研究全般の総括および メソポーラス酸化物の 合成、構造・機能解析	平成 14 年 11 月～ 平成 20 年 3 月

浅岡グループ

(構造複合によるゼオライト・ナノポーラス構造制御と触媒反応への応用に関する研究)

氏 名	所 属	役 職	研究項目	参加時期
浅岡佐知夫	北九州市立大 学国際環境工 学部	教授	研究全般の総括および 構造複合によるゼオラ イト・ナノポーラス構 造制御と触媒反応への 応用	平成 15 年 4 月～ 平成 20 年 3 月
簗原 伸二	北九州市立大 学大学院 国際環境工学 研究科	修士	構造複合によるゼオラ イト・ナノポーラス構 造制御と触媒反応への 応用	平成 16 年 4 月～ 平成 18 年 4 月
有田 真樹	北九州市立大 学大学院 国際環境工学 研究科	修士	構造複合によるゼオラ イト・ナノポーラス構 造制御と触媒反応への 応用	平成 17 年 4 月～ 平成 17 年 12 月
伊藤亨亮	北九州市立大 学大学院 国際環境工学 研究科	修士	構造複合によるゼオラ イト・ナノポーラス構 造制御と触媒反応への 応用	平成 18 年 4 月～ 平成 19 年 10 月
ジャンフィ	北九州市立大 学大学院 国際環境工学 研究科	修士	構造複合によるゼオラ イト・ナノポーラス構 造制御と触媒反応への 応用	平成 18 年 4 月～ 平成 19 年 10 月

岩本グループ

(規則性ナノ多孔体の壁構造制御による新機能および新触媒反応の開拓に関する研究)

氏名	所属	役職	研究項目	参加時期	備考
○ 岩本 正和	東京工業大学 資源化学研究所	教授	研究全般の総括および壁構造制御による新しい機能材料の創製	H15.11－ 平 19.9	
石谷 暖郎	東京工業大学 資源化学研究所	講師	規則性ナノ空間物質の特異な酸触媒作用の究明	H15.11－ 平 19.9	
山本 孝	東京工業大学 資源化学研究所	助教	金属イオン担持ナノ多孔体の触媒特性の解明	H15.11－ 平 18.9	
田中 敏弘	東京工業大学 資源化学研究所	助教	壁構造制御による新しい機能材料の創製	H15.11－ 平 19.9	

窪田グループ

(アミノ基固定化メソポーラスシリカの合成と塩基触媒としての応用、新型ゼオライト MCM-68 類縁体の合成の研究)

氏 名	所 属	役 職	研究項目	参加時期
窪田 好浩	横浜国立大学	准教授	研究全般の総括および規則性シリカナノ空間と分子触媒のシナジー効果など	平成 17 年 4 月～ 平成 20 年 3 月
山田登士	横浜国立大学	大学院生	Knoevenagel 反応 アルドール反応など	平成 17 年 4 月～ 平成 18 年 3 月

5 招聘した研究者等

氏 名 (所属、役職)	招聘の目的	滞在先	滞在期間

6 成果発表等

(1)原著論文発表 (国内誌 6 件、国際誌 94 件) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

【国内】

1. 横井 俊之、辰巳 敬、アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカの合成、ゼオライト、vol.27(3)、57-67 (2005).
2. 辰巳 敬、横井 俊之、キラルなチャンネルを持ったメソポーラス材料、化学と工業 vol.58(8)、944-946 (2005).
3. 辰巳 敬、Ti-ゼオライト触媒による過酸化水素を用いた酸化反応、触媒、47,(3), 219-225 (2005).
4. 辰巳 敬、触媒の進化とプロセス改革、化学工学, 69,(5), 232-235 (2005).
5. 辰巳 敬、ゼオライト・メソポーラス触媒、日本化学会編実験化学講座第 5 版第 25 巻, 77-93 (2005)
6. 第 2 版 石油辞典, 辰巳 敬 編集委員長, 石油学会編, 丸善, (2005)

【国際】

(2003年)

1. Shunai Che, Alfonso E. Garcia-Bennett, Toshiyuki Yokoi, Kazutami Sakamoto, Hironobu Kunieda, Osamu Terasaki, Takashi Tatsumi, Mesoporous Silica of Novel Structures with Periodic Modulations Synthesized by Anionic Surfactant Templating Route, Nature Materials, 2, 801-805 (2003).
2. W. Fan, P. Wu, and T. Tatsumi, A Titanosilicate That is Structurally Analogous to MWW Lamellar Precursor, Angew. Chem. Intl. Ed., 43, 236-240 (2004).
3. Bozhi Tian, Shunai Che, Zheng Liu, Xiaoying Liu, Weibin Fan, Takashi Tatsumi, Osamu Terasaki, Dongyuan Zhao, Novel Approaches to Synthesize Self-supported Ultrathin Carbon Nanowire Arrays Templated by MCM-41, Chem Commun., 2726 - 2727 (2003).
4. Satoshi Kamiya, Hiroshi Tanaka, Shunai Che, Takashi Tatsumi, Osamu Terasaki Electron microscopic study of structural evolutions of silica mesoporous crystals: crystal-growth and crystal-transformation from $p6mm$ to $Pm3n$ with time, Solid State Sciences, 5, 197-204 (2003).
5. Peng Wu, Takashi Tatsumi, A Novel Titanosilicate with MWW Structure: III. Highly Efficient and Selective Production of Glycidol through Epoxidation of Allyl Alcohol with H_2O_2 , J. Catal., 214, 317-326 (2003).
6. Katsutoshi Yamamoto, Yasuyuki Sakata, Yuki Nohara, Yoko Takahashi, Takashi Tatsumi, Organic-Inorganic Hybrid Zeolites Containing Organic Frameworks, Science, 300, 470-472 (2003).

7. Naoko. Igarashi, Keiko A. Koyano, Yoshinori Tanaka, Shinichi Nakata, Kazuhito Hashimoto, Takashi Tatsumi, Investigation of the factors influencing the structural stability of mesoporous silica molecular sieves, *Microporous Mesoporous Mater.*, 59, 43-52 (2003).
8. Hideaki Yoshitake, Takashi Tatsumi, Vanadium Oxide Incorporated into Mesoporous Titania with a BET Surface Area above $1000 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$: Preparation, Spectroscopic Characterization and Catalytic Oxidation, *Chem. Mater.*, 15, 1695-1702 (2003).
9. Hideaki Yoshitake, Toshiyuki Yokoi, Takashi Tatsumi, Adsorption Behavior of Arsenate at Transition Metal Cations captured by Amino-Functionalized Mesoporous Silica, *Chem. Mater.* 15, 1713-1721 (2003).
10. Hideaki Yoshitake, Toshiyuki Yokoi, and Takashi Tatsumi, Oxyanion Adsorptions by Mono-, Di-, and Triamino-Functionalized MCM-48, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 76, 847-852 (2003).
11. Duangamol Nuntasri, Peng Wu, Takashi Tatsumi, Highly Active Delaminated Ti-MWW for Epoxidation of Bulky Cycloalkenes with Hydrogen Peroxide, *Chem. Lett.*, 326-327 (2003).
12. Toshiyuki Yokoi, Hideaki Yoshitake and Takashi Tatsumi, Synthesis of Anionic-Surfactant-Templated Mesoporous Silica Using Organoalkoxysilane -Containing Amino Groups, *Chem. Mater.*, 15, 4536-4538 (2003).
13. Toshiyuki Yokoi, Takashi Tatsumi and Hideaki Yoshitake, Selenate Adsorption on Cationated Amino-Functionalized MCM-41, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 76, 847-852 (2003).
14. Shunai Che, Alfonso E. Garcia-Bennett, Xiaoying Liu, R. P. Hodgkins, Paul A. Wright, Dongyuan Zhao, Osamu Terasaki and Takashi Tatsumi, Synthesis of Large-Pore **1a 3d** Mesoporous Silica and its Tube-Like Carbon Replica, *Angew. Chem. Intl Ed.*, 42, 3930-3934 (2003).
15. Shunai Che, Kristina Lund, Takashi Tatsumi, Sumio Iijima, Sang Hoon Joo, Ryong Ryoo, Osamu Terasaki, Direct Observation of Three Dimensional Mesoporous Structure by SEM: SBA-15 silica and CMK-5 carbon, *Angew. Chem., Intl. Ed.*, 42, 2182-2185 (2003).
16. Sung-Hyun Lim, Hideaki Yoshitake, Takashi Tatsumi, Phase transition of SBA-1 induced by embedded heteropoly acids, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 146, 125-128 (2003).
17. Shunai Che, Mizue Kaneda, Osamu Terasaki, Takashi Tatsumi, Counteranion effect on the formation of mesoporous materials under acidic synthesis process, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 146, 431-434 (2003).
18. Toshiyuki Yokoi, Hideaki Yoshitake, Takashi Tatsumi, Environmentally benign removal of pollutant oxyanions by Fe adsorption center in functionalized mesoporous silica, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 146, 531-534 (2003).
19. Peng Wu, Hiroyuki Sugiyama, Takashi Tatsumi, Direct synthesis of hydrothermally stable mesoporous Ti-MSU-G and its catalytic properties in liquid-phase oxidation, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 146, 613-616 (2003).

(2004 年)

20. Alfonso E. Garcia-Bennett, Osamu Terasaki, Shunai Che, Takashi Tatsumi, Structural Investigations of AMS-n Mesoporous Materials by Transmission Electron Microscopy, *Chem. Mater.* **16**, 813-821 (2004).
21. Toshiyuki Yokoi, Hideaki Yoshitake and Takashi Tatsumi, Synthesis of amino-functionalized MCM-41 via direct co-condensation and post-synthesis grafting methods using mono-, di- and tri-amino-organoalkoxysilanes. *J. Mater. Chem.*, **14**, 951-957 (2004).
22. Peng Wu, Duangamol Nuntasri, Juanfang Ruan, Yueming Liu, Minyuan He, Weibin Fan, Osamu Terasaki, Takashi Tatsumi, Delamination of Ti-MWW and High Efficiency in Epoxidation of Alkenes with Various Molecular Sizes, **108**, 19126-19131 (2004).
23. Peng Wu, Yueming Liu, Minyuan He, Takashi Tatsumi, A novel titanosilicate with MWW structure catalytic properties in selective epoxidation of diallyl ether, *J. Catal.*, **228**, 183-191 (2004).
24. Chawalit Ngamcharussrivichai, Peng Wu, Takashi Tatsumi, Liquid-Phase Beckmann Rearrangement of Cyclohexanone Oxime over Mesoporous Molecular Sieve Catalysts, *J. Catal.*, **227**, 448-458 (2004).
25. Chawalit Ngamcharussrivichai, Peng Wu, Takashi Tatsumi, Selective Production of ϵ -Caprolactam via Liquid-phase Beckmann Rearrangement of Cyclohexanone Oxime over HUSY Catalyst, *Chem Lett*, **33**, 1288-1289. (2004).
26. Yukito Oda, Katsuya Fukuyama, Keiko Nishikawa, Seitaro Namba, Hideaki Yoshitake, Takashi Tatsumi, Mesocellular foam carbons: aggregates of hollow carbon spheres with open and closed wall structures, *Chem. Mater.*, **16**, 3860-3866 (2004).
27. Yasuhide Goa, Peng Wu, Takashi Tatsumi, Catalytic Performance of [Ti, Al]-Beta in the Alkene Epoxidation Controlled by the Post-synthetic Ion-exchange, *J. Phys. Chem. B*, **108**, 8401-8411(2004).
28. Hideaki Yoshitake, Emi Koiso, Takashi Tatsumi, Haruyuki Horie and Hiroyuki Yoshimura, Preparation and Characterization of Polyamine-Functionalized Mesoporous Silica, *Chem. Lett.*, **33**, 872-873 (2004).
29. Shunai Che, Zheng Liu, Tetsu Ohsuna, Kazutami Sakamoto, Osamu Terasaki, Takashi Tatsumi, Synthesis and characterization of chiral mesoporous silica, *Nature*, **429**, 281-284 (2004).
30. Yasuhide Goa, Hideaki Yoshitake, Peng Wu, Takashi Tatsumi, Controlled detitanation of ETS-10 materials through the post-synthetic treatment and their applications to the liquid-phase epoxidation of alkenes, *Microporous Mesoporous Mater.*, **70**, 93-101 (2004).
31. Yasuhide Goa, Peng Wu, Takashi Tatsumi, Liquid-phase Knoevenagel reactions over modified basic microporous titanosilicate ETS-10, *J. Catal.*, **224**, 107-114 (2004).
32. Yasuhide Goa, Peng Wu, Takashi Tatsumi, Influence of Fluorine on the Catalytic Performance of Ti-Beta Zeolite, *J. Phys. Chem. B*, **108**, 4242-4244 (2004).
33. Alfonso E. Garcia-Bennett, Osamu Terasaki, Shunai Che, Takashi Tatsumi, Structural Investigations of AMS-n Mesoporous Materials by Transmission Electron Microscopy, *Chem. Mater.*, **16**, 813-821 (2004).

34. Toshiyuki Yokoi, Takashi Tatsumi, Hideaki Yoshitake, Fe³⁺ coordinated to amino-functionalized MCM-41: an adsorbent for the toxic oxyanions with high capacity, resistibility to inhibiting anions and reusability after a simple treatment, *J. Colloid Interface Sci.*, **274**, 451-457 (2004)

(2005 年)

35. Hideaki Yoshitake, Tae Sugihara and Takashi Tatsumi, EXAFS study on disorder in microstructure of amorphous mesoporous titania with large surface areas. *Phys. Scripta*, **T115**, 349-351 (2005).

36. Shunai Che, Yasuhiro Sakamoto, Osamu Terasaki and Takashi Tatsumi, The structure and morphology control of mesoporous silica under acidic conditions, *Microporous Mesoporous Mater.*, **85**, 207-218 (2005).

37. Chawalit Ngamcharussrivichai, Peng Wu and Takashi Tatsumi, Active and selective catalyst for liquid phase Beckmann rearrangement of cyclohexanone oxime, *J. Catalysis*, **235**, 139-149 (2005).

38. Weibin Fan, Ruifeng Li, Tao Dou, Takashi Tatsumi and Bert M. Weckhuysen, Solvent effects in the synthesis of CoAPO-5, -11 and -34 molecular sieves, *Microporous Mesoporous Mater.*, **84**, 116-126 (2005).

39. Chawalit Ngamcharussrivichai, Peng Wu and Takashi Tatsumi, Catalytically active and selective centers for production of ϵ -caprolactam through liquid phase Beckmann rearrangement over H-USY catalyst, *Applied Catal. A: General*, **288**, 158-168 (2005).

40. Naoko Igarashi, Satoshi Kidani, Rizwan Ahemaito, Kazuhito Hashimoto and Takashi Tatsumi, Direct organic functionalization of Ti-MCM-41: Synthesis condition, organic content, and catalytic activity, *Microporous Mesoporous Mater.*, **81**, 97-105 (2005).

41. Peng Wu, Takayuki Miyaji, Yueming Liu, Minyuan He and Takashi Tatsumi, Synthesis of Ti-MWW by a dry-gel conversion method, *Catal. Today*, **99**, 233-240 (2005).

42. Qinghua Xia, Takashi Tatsumi, Crystallization kinetics of nanosized Ti-beta zeolites with high oxidation activity by a dry-gel conversion technique, *Mater. Chem. Phys.*, **89**, 89-98 (2005).

43. S.H. Lim, S. Che, H. Yoshitake, T. Tatsumi, Synthesis of 3d-Hexagonal (*P6₃/mmc*) Mesoporous Materials Using C_nTEABr-Type Surfactants via Acidic Synthesis Route, *Chem. Lett.*, **34**, 792-793 (2005).

44. S.H. Lim, H. Yoshitake, T. Tatsumi, Synthesis of Cubic Ia3d-like Mesoporous Silica at Low Temperature Using an Oligomeric Nonionic Surfactant, *Chem. Lett.*, **34**, 1434-1435 (2005).

45. F. Song, Y. Liu, H. Wu, M. He, p. Wu, T. Tatsumi, Highly Effective Synthesis of Cyclohexanone Oxime over a Novel Titanosilicate Ti-MWW, *Chem. Lett.*, **34**, 1436-1437 (2005).

(2006年)

46. P. Srinivasu, S. Lim, Y. Kubota, and T. Tatsumi, Synthesis of highly ordered mesoporous *p6₃/mmc* and *p6mm* phases by adding alcohols to the system for the SBA-1 synthesis, *Catal. Today*, **111 (3-4)**, 379-384 (2006).

47. T. Yokoi, H. Yoshitake, T. Yamada, Y. Kubota, and T. Tatsumi, Amino-functionalized mesoporous silica synthesized by a novel synthesis route using an

anionic surfactant, *J. Mater. Chem.*, **16**, 1125-1135 (2006).

48. Y. Kubota, H. Ikeya, Y. Sugi, T. Yamada, and T. Tatsumi, Organic-inorganic hybrid catalysts based on ordered porous structures for Michael reaction, *J. Mol. Catal., A: Chemical*, in press (Available online 13 February 2006).

49. Fen Song, Yueming Liu, Haihong Wu, Mingyuan He, Peng Wu and Takashi Tatsumi, A novel titanosilicate with MWW structure: Highly effective liquid-phase ammoxidation of cyclohexanone, *J. Catalysis*, **237**, 359-367 (2006).

50. Chawalit Ngamcharussrivichai, Peng Wu, Takashi Tatsumi, □ "Enhancement effect of organic additives on liquid-phase production of ϵ -caprolactam", □ *Catal. Commun.*, **8**(2), 135-138 (2006).

51. M. Harada, K. Domen, M. Hara, T. Tatsumi, "Ba_{1.0}Co_{0.7}Fe_{0.2}Nb_{0.1}O_{3- δ} Dense Ceramic as an Oxygen Permeable Membrane for Partial Oxidation of Methane to Synthesis Gas", □ *Chem. Lett.*, **35**, 1326-1327 (2006).

52. Xiangju Meng, Weibin Fan, Yoshihiro Kubota, Takashi Tatsumi, □ "Improvement in thermal stability and catalytic activity of titanium species in mesoporous titanosilicates by addition of ammonium salts", □ *J. Catal.*, **244**, 192-198 (2006).

53. Yokoi, Toshiyuki; Sakamoto, Yasuhiro; Terasaki, Osamu; Kubota, Yoshihiro; Okubo, Tatsuya; Tatsumi, Takashi, □ "Periodic Arrangement of Silica Nanospheres Assisted by Amino Acids", □ *J. Am. Chem. Soc.*, **128**(42), 13664-13665 (2006).

54. Fan, Weibin; Wu, Peng; Namba, Seitaro; Tatsumi, Takashi, □ "Synthesis and catalytic properties of a new titanosilicate molecular sieve with the structure analogous to MWW-type lamellar precursor", □ *J. Catal.*, **243**(1), 183-191(2006).

55. Wu, Peng; Nuntasri, Duangamol; Liu, Yueming; Wu, Haihong; Jiang, Yongwen; Fan, Weibin; He, Mingyuan; Tatsumi, Takashi, □ "Selective liquid-phase oxidation of cyclopentene over MWW type titanosilicate", □ *Catal. Today*, **117**(1-3), 199-205 (2006).

56. Misono, Makoto; Imanari, Makoto; Haruta, Masatake; Fukuzumi, Shunichi; Tatsumi, Takashi; Ueda, Wataru, "Special issue of catalysis today devoted to 5th WCOC", □ *Catal. Today*, **117**(1-3), 1-2 (2006).

57. Harada, Makoto; Domen, Kazunari; Hara, Michikazu; Tatsumi, Takashi, □ Oxygen-permeable membranes of Ba_{1.0}Co_{0.7}Fe_{0.2}Nb_{0.1}O_{3- δ} for preparation of synthesis gas from methane by partial oxidation", □ *Chem. Lett.*, **35**(8), 968-969 (2006).

58. Fan, Weibin; Fan, Binbin; Song, Minggang; Chen, Tiehong; Li, Ruifeng; Dou, Tao; Tatsumi, Takashi, □ "Synthesis, characterization and catalysis of (Co, V)-, (Co, Cr)- and (Cr, V)APO-5 molecular sieves", □ *Microporous Mesoporous Mater.*, **94**(1-3), 348-357 (2006).

59. Shirokura, Nao; Nakajima, Kiyotaka; Nakabayashi, Akira; Lu, Daling; Hara, Michikazu; Domen, Kazunari; Tatsumi, Takashi; Kondon, Junko N, □ "Synthesis of Crystallized Mesoporous Transition metal Oxides by Silicone Treatment of the Oxide Precursor", □ *Chem. Commun.*, 2188-2190 (2006).

60. Okamura, Mai; Takagaki, Atsushi; Toda, Masakazu; Kondo, Junko N.; Domen, Kazunari; Tatsumi, Takashi; Hara, Michikazu; Hayashi, Shigenobu, □ "Acid-Catalyzed Reactions on Flexible Polycyclic Aromatic Carbon in Amorphous Carbon", □ *Chem. Mater.*, **18**(13), 3039-3045 (2006).

61. Feng-Shou Xiao, Lifeng Wang, Chengyang Yin, Kaifeng Lin, Yan Di, Jixue Li, Ruren Xu, Dang Sheng Su, Robert Schl, Toshiyuki Yokoi, Takashi Tatsumi, □ "Catalytic Properties of Hierarchical Mesoporous Zeolites Templated with a Mixture of Small Organic Ammonium Salts and Mesoscale Cationic Polymers" □ *Angew. Chem.Int. Ed. Eng.*, 45, 3090-3093 (2006).
62. Jana, Suman K.; Wu, Peng; Tatsumi, Takashi, □ "NiAl hydrotalcite as an efficient and environmentally friendly solid catalyst for solvent-free liquid-phase selective oxidation of ethylbenzene to acetophenone with 1 atm of molecular oxygen", □ *J. Catal.*, 240(2), 268-274 (2006).
63. Kim, Hyun-Jong; Ahn, Ji-Eun; Haam, Seungjoo; Shul, Yong-Gun; Song, Si-Young; Tatsumi, Takashi, □ "Synthesis and characterization of mesoporous Fe/SiO₂ for magnetic drug targeting", □ *J. Mater. Chem.*, 16(17), 1617-1621 (2006).

(2007年)

64. T. Yokoi, T. Tatsumi, "Synthesis of mesoporous silica materials by using anionic surfactants as template", *J. Jpn. Petrol. Inst.*, 50, 299-311 (2007).
65. S. Inagaki, T. Yokoi, Y. Kubota, T. Tatsumi, "Unique adsorption properties of organic-inorganic hybrid zeolite IEZ-1 with dimethylsilylene moieties", *Chem. Commun.*, 5188-5190 (2007).
66. Y. Kubota, Y. Sugi, T. Tatsumi, "Organic-inorganic hybrid catalysts based on ordered porous structures for carbon-carbon bond forming reactions", *Catal. Surveys Asia*, 11, 158-170 (2007).
67. D. Chandra, T. Yokoi, T. Tatsumi, A. Bhaumik, "Highly luminescent organic-inorganic hybrid mesoporous silicas containing tunable chemosensor inside the pore", *Chem. Mater.*, 19, 5347-5354 (2007).
68. X. Meng, T. Yokoi, D. Lu, T. Tatsumi, "Synthesis and characterization of chiral periodic mesoporous organosilica", *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46, 7796-7798 (2007).
69. K. Yamamoto, Y. Sakata, T. Tatsumi, "Solid-state ¹³C NMR studies on organic-inorganic hybrid zeolites", *J. Phys. Chem. B*, 111, 12119-12123 (2007).
70. T. Yokoi, M. Iwama, R. Watanabe, Y. Sakamoto, O. Terasaki, Y. Kubota, J. N. Kondo, T. Tatsumi, "Synthesis of well-ordered nanospheres with uniform mesopores assisted by basic amino acids", *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 170 (B), 1774-1780 (2007).
71. Y. Kubota, M. Yoshida, T. Tatsumi, "Nanostructural modification of organic-tethered MCM-22 catalyst and its catalytic performance", *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 170 (A), 629-634 (2007).
72. T. Tatsumi, P. Wu, W. Fan, "Ti-MWW and related materials as efficient oxidation catalysts", *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 170 (B), 1051-1058 (2007).
73. W. Fan, X. Meng, T. Yokoi, Y. Kubota, T. Tatsumi, "Synthesis of mesostructured silica with strongly hydrophilic surfactant templates", *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 165, 49-52 (2007).
74. S. K. Jana, Y. Kubota, T. Tatsumi, "Selective □-alkylation of ketones with alcohols catalyzed by highly active mesoporous Pd/MgO-Al₂O₃ type basic solid derived from Pd-supported MgAl-hydrotalcite", *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 165, 701-704 (2007).

75. X. Meng, T. Tatsumi, "Fluorinated surfactant with short carbon chain templating macropores in hierarchically mesoporous/macroporous silica", *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 165, 45-48 (2007).
76. T. Yokoi, M. Iwama, T. Okubo, Y. Sakamoto, O. Terasaki, Y. Kubota, T. Tatsumi, "Synthesis of silica nanospheres with well-ordered mesopores assisted by amino acids", *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 165, 599-602 (2007).
77. X. Meng, D. Lu, T. Tatsumi, "Synthesis of mesoporous silica single crystal SBA-16 assisted by fluorinated surfactants with short carbon-chains", *Microporous Mesoporous Mater.*, 105, 15-23 (2007).
78. N. Igarashi, K. Hashimoto, T. Tatsumi, "Catalytic studies on trimethylsilylated Ti-MCM-41 and Ti-MCM-48 materials", *Microporous Mesoporous Mater.*, 104, 269-280 (2007).
79. T. Yokoi, Y. Yamataka, Y. Ara, S. Sato, Y. Kubota, T. Tatsumi, "Synthesis of chiral mesoporous silica by using chiral anionic surfactants", *Microporous Mesoporous Mater.*, 103, 20-28 (2007).
80. X. Meng, D. Lu, T. Tatsumi, "Synthesis of mesoporous silica single crystal SBA-16 by fluorinated surfactants with short carbon chains", *Chem. Lett.*, 36, 670-671 (2007).
81. S. K. Jana, Y. Kubota, T. Tatsumi, "High activity of Mn-MgAl hydrotalcite in heterogeneously catalyzed liquid-phase selective oxidation of alkylaromatics to benzylic ketones with 1 atm of molecular oxygen", *J. Catal.*, 247, 214-222 (2007).
82. Y. Kubota, H. Maekawa, S. Miyata, T. Tatsumi, Y. Sugi, "Hydrothermal synthesis of metallosilicate SSZ-24 from metallosilicate beta as precursors", *Microporous Mesoporous Mater.*, 101, 115-126 (2007).
83. Q. Zhu, J. N. Kondo, T. Tatsumi, S. Inagaki, R. Ohnuma, Y. Kubota, Y. Shimodaira, K. Domen, "A comparative study of methanol to olefin over CHA and MTF zeolites", *J. Phys. Chem. C*, 111, 5409-5415 (2007).
84. C. Ngamcharussrivichai, P. Wu, T. Tatsumi, "Enhancement effect of organic additives on liquid-phase production of ϵ -caprolactam", *Catal. Commun.*, 8, 135-138 (2007).

(2008年)

85. W. Fan, Y. Kubota, T. Tatsumi, "Oxidation of 1,4-dioxane over Ti-MWW in the presence of H₂O₂", *ChemSusChem.*, 1, 175-178 (2008).
86. K. Sakar, T. Yokoi, T. Tatsumi, A. Bhaumik, "Mesoporous hybrid zirconium oxophenylphosphate synthesized in absence of any structure directing agent", *Microporous Mesoporous Mater.*, 110, 405-412 (2008).
87. S. K. Jana, Y. Kubota, T. Tatsumi, "Cobalt-substituted polyoxometalate pillared hydrotalcite: Synthesis and catalysis in liquid-phase oxidation of cyclohexanol with molecular oxygen", *J. Catal.*, 255, 40-47 (2008).
88. Y. Kubota, C. Jin, T. Tatsumi, "Performance of organic-inorganic hybrid catalysts based on Ia-3d mesoporous silica", *Catal. Today*, 132, 75-80 (2008).
89. K. Yamamoto, T. Tatsumi, "ZOL: A new type of organic-inorganic hybrid zeolites containing organic framework", *Chem. Mater.*, 20, 972-980 (2008).

90. Y. Koyama, T. Ikeda, T. Tatsumi, Y. Kubota, “A multi-dimensional microporous silicate that is isomorphous to zeolite MCM-68”, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 47, 1042-1046 (2008).
91. P. Wu, J. Ruan, L. Wang, L. Wu, Y. Wang, Y. Liu, W. Fan, M. He, O. Terasaki, T. Tatsumi, “A Methodology for Synthesizing Crystalline Metallosilicates with Expanded Pore Windows Through Molecular Alkoxysilylation of Zeolitic Lamellar Precursors”, *J. Am. Chem. Soc.*, in press (2008).
92. W. Fan, Peng Wu, T. Tatsumi, “Unique solvent effect of microporous crystalline titanosilicates in the oxidation of 1-hexene and cyclohexene”, *J. Catal.*, in press(2008).
93. Q. Zhu, M. Hinode, T. Yokoi, J. N. Kondo, Y. Kubota, T. Tatsumi, “Methanol-to-olefins over gallosilicate analogues of chabazite zeolite”, *Microporous Mesoporous Mater.*, in press (2008).
94. B. Tjsebaert, C. Varszegi, H. Gies, F.-S. Xiao, X. Bao, T. Tatsumi, U. Müller, D. De Vos “Liquid phase separation of 1-butene from 2-butenes on all-silica zeolite RUB-41”, *Chem. Commun.*, in press (2008)

(2)その他の著作物 (総説、書籍など)

発表総数 (国内 3 件、国際 0 件)

【国内】

1. 辰巳 敬 「第 2 章 酸化反応」 in 「ゼオライト触媒開発の新展開」 シーエムシー, 137-152 (2004)
2. 辰巳 敬, “これからのメソポーラス材料”, ペトロテック, 29, 649-655 (2006).
3. 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳敬, “左巻きおよび右巻きのシリカ細孔を作り分ける”, 未来材料, 2007, 3, 36-43.

【国際】

(3)学会発表 (国際学会及び主要な国内学会発表) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

① 招待講演 (国内会議 7 件、国際会議 13 件)

国内

1. 辰巳 敬 ゼオライト・メソポーラス物質を触媒としたグリーン反応 第 2 回環境触媒シンポジウム、2005 年 11 月 8 日、つくば
2. 辰巳 敬, 金属を骨格に含んだゼオライト触媒によるグリーン酸化反応, 日本化学会第 86 春季年会(2006), 千葉, 2006. 3.27-30.
3. 辰巳敬, 第 7 回九州／沖縄支部講演会 ナノ空間の高度利用触媒技術, 北九州学術研究都市, 2006 年 10 月 19 日
4. 辰巳敬, 有機無機複合相の自在変換によるグリーン触媒の創製, ナノテクノロジー分野別バーチャルラボ成果報告会 ナノテクは進化する, 東京国際フォーラム ホール B7, 2007 年 7 月 15 日
5. 横井俊之, ゼオライトおよびメソポーラスシリカ材料の研究における固体 NMR の役割, 第 10 回固体 NMR 技術交流会, 東京, 2007 年 3 月 23 日
6. 辰巳 敬, 横井 俊之, 渡邊 亮太, チタン含有規則配列シリカナノ粒子の合成と触媒としての応用, 3C-11, 招待講演, 第 60 回コロイドおよび界面化学討論

会, 松本, 9/20-22, 2007.

7. 辰巳 敬, ゼオライト触媒の反応場制御による高効率化, 1SA-02, 招待講演, 日本化学会第 88 回春季年会, 東京, 3/26-30, 2008.

国際

1. T. Tatsumi, Clean Chemicals Synthesis on Zeolites, The 10th Annual Saudi-Japan Symposium on Catalysis in Petroleum Refining and Petrochemicals, Daharan, Saudi Arabia, November 2001.
2. T. Tatsumi, Synthesis of Ti-MWW as a Highly Active Oxidation Catalyst, 10th Asia Congress on Chemistry, Hanoi, Vietnam, October 2003
3. T. Tatsumi, Development of Post-synthesis method for preparing Ti-MWW as a highly active oxidation catalyst, The 3rd Conference of the Indo-Pacific Catalysis Association, Taipei, November 2003
4. P. Wu, and T. Tatsumi, "A New Generation of Titanosilicate Catalysts: Preparation and Application", 3rd Asia-Pacific Congress on Catalysis (APCAT), Dailian, China, Oct. 12-15, 2003 (Keynote Lecture).
5. Takashi Tatsumi (横国大), A Novel Synthesis Route of Amino-Functionalized Mesoporous Silica Using an Anionic Surfactant, The 4th International Mesostructured Materials Symposium (IMMS), Cape Town, South Africa, May 1-4, 2004.
6. Takashi Tatsumi "Activity of Green & Sustainable Network in Japan" 7th International Symposium on Green Chemistry in China, Zhuhai, China, May 25, 2005
7. Takashi Tatsumi "Silica of Novel Structures with Periodic Modulations Synthesized by Anionic Surfactant Templating Route", Gordon Research Conference on Zeolitic & Layered Materials, South Hadley, MA, USA, July 4, 2005.
8. Takashi Tatsumi "Syntheses of Petrochemicals by Using Mesoporous Silica with Functionalized Silica Catalysts" 15th Annual Japan-Saudi Symposium on Catalysis in Petroleum Refining and Petrochemicals, Dharan, Saudi Arabia, November 28, 2005.
9. Takashi Tatsumi "Novel Large Space Zeolite Catalysts Extremely Active in the Oxidation with H₂O₂ as a Green Oxidant" Joint US-Japan Workshop on Sustainable Chemical Synthesis, Honolulu, Hawaii, USA, December 14, 2005
10. Takashi Tatsumi "Mesoporous Silica Materials with Unique Structure Synthesized by Anionic Surfactants", Pacificchem, Honolulu, Hawaii, USA. December 20, 2005
11. T. Tatsumi, New generation of titanosilicate zeolites as green oxidation catalysts utilizing hydrogen peroxide as oxidant, 2005 環太平洋国際化学会議, ホノルル、米国、2005. 12.15-20.
12. Takashi Tatsumi, New Large Pore Metallosilicate Zeolites Structurally Analogous to MWW as Active Catalyst for Green Chemical Conversion, Malaysian Chemical Congress 2006 (MCC2006), Sunway Pyramid Convention Center, Malaysia, September 19-21, 2006.
13. Toshiyuki Yokoi, An Amazing Talent of Basic Amino Acids for Assembling Nanospheres, Seventh International Symposium on Biomimetic Materials

② 口頭発表 (国内会議 143 件、国際会議 11 件)
国内

(2003 年)

1. 呉 鵬、Fan Weibin、辰巳 敬、難波征太郎、新規層状チタノシリケートの調製および触媒作用、第 92 回触媒討論会 B、2003、2A13、徳島。
2. 後安康秀、呉 鵬、辰巳 敬、ヘテロ金属含有 ETS-10 チタノシリケートを用いた液相塩基触媒反応、第 92 回触媒討論会 A、2003、2F20、徳島。
3. 林 幹夫、呉 鵬、辰巳 敬、高性能 Baeyer-Villiger 酸化触媒の調製と触媒作用、第 33 回石油・石油化学討論会学会、2003、B39、大阪。
4. 杉本香居、呉 鵬、辰巳 敬、フッ化物法による MWW 型チタノシリケートの合成とその触媒特性、第 33 回石油・石油化学討論会学会、2003、B40、大阪。
5. 呉 鵬、Weibin Fan、Duangamol Nuntasuri、辰巳 敬、難波征太郎、ポスト処理による MWW 構造の制御および高性能チタノシリケートの調製、第 19 回ゼオライト研究発表会、2003、A33 総合、金沢。
6. 後安康秀、吉武英昭、呉 鵬、辰巳 敬、ETS-10 チタノシリケートの触媒特性、第 19 回ゼオライト研究発表会、2003、B1 総合、金沢。
7. 呉 鵬、杉本香居、Weibin Fan、辰巳 敬、調製法の異なる Ti-MWW の触媒特性、第 92 回触媒討論会 B、2004、1A05、大阪。
8. 林 幹夫、呉 鵬、辰巳 敬、ガロシリケート触媒を用いた Baeyer-Villiger 酸化反応のグリーン化、日本化学会第 84 春季年会、2004、2C4-40、大阪。
9. 大沼良介、呉 鵬、辰巳 敬、大口径ゼオライト ITQ-21 の合成条件の検討、日本化学会第 84 春季年会、2004、3L1-39、大阪。
10. 車順愛、寺崎治、Dongyuan Zhao、辰巳敬、メソポーラスカーボンの合成、第 19 回ゼオライト研究発表会、A14、平成 15 年 11 月 20-21 日、金沢公民会館他（金沢市）
11. 土門佑輔、山本勝俊、野原雄貴、辰巳敬、ZOL 合成時の骨格内メチレン基の開裂過程の検討、第 19 回ゼオライト研究発表会、A10、平成 15 年 11 月 20-21 日、金沢公民会館他（金沢市）

(2004 年)

12. 横井俊之、車順愛、Alfonso E.、Garacia-Bennett、坂本一民、寺崎治、辰巳敬、アニオン界面活性剤を用いた特異な構造を有するメソポーラスシリカの合成、日本化学会第 84 春季年会、2H1-42、西宮、2004 年 3 月
13. 土門佑輔、中西哲也、野原雄貴、山本勝俊、辰巳敬、骨格内有機基含有 MWW、ITQ-21 ゼオライトの合成とキャラクタリゼーション、日本化学会第 84 春季年会、3L1-34、西宮、2004 年 3 月
14. 中西哲也、土門佑輔、山本勝俊、辰巳敬、骨格内に有機基を含有するゼオライトの合成と解析、日本化学会第 84 春季年会、3L1-36、西宮、2004 年 3 月
15. 織田祐喜人、難波征太郎、吉武英昭、辰巳 敬、メソ細泡性炭素の合成と構造解析、第19回ゼオライト研究発表会、C13、平成15年11月20-21日、金沢公民会館他(金沢市)
16. 芝野将史、吉武英昭、辰巳 敬、メソポーラスシリカの結晶構造と形態の制御、第19回ゼオライト研究発表会、A18、平成15年11月20-21日、金沢公民会館他(金沢市)
17. 横井俊之、吉武英昭、辰巳 敬、アニオン界面活性剤を用いたアミノ基含有メソポーラスシリカの合成、第19回ゼオライト研究発表会、A28、平成15年11月20-21日、金沢公民会館他(金沢市)
18. Weibin Fan (横国大)、呉 鵬 (華東師範大)、辰巳 敬 (横国大)、Ti-YNU-1: an effective catalyst for the epoxidation of alkenes, 第 94 回触媒討論会、仙台、2004. 9. 27-30
19. Suman K. Jana (横国大)、呉 鵬 (華東師範大)、辰巳 敬 (横国大)、NiAl-hydrotalcite as efficient solid catalyst for liquid-phase selective oxidation of ethylbenzene to acetophenone with molecular oxygen, 第 94 回触媒討論会、仙台、2004. 9. 27-30
20. 林 幹夫 (横国大)、呉 鵬 (華東師範大)、辰巳 敬 (横国大)、種々のメタロシリケート触媒による Baeyer-Villiger 酸化反応、第 94 回触媒討論会、仙台、2004. 9. 27-30
21. 林 幹夫 (横国大)、呉 鵬 (華東師範大)、辰巳 敬 (横国大)、ガロシリケート触媒による高性能 Baeyer-Villiger 酸化反応、第 34 回石油・石油化学討論会、松山、2004. 11. 18-19
22. 西野 亜季子 (横国大)、Weibin Fan (横国大)、呉 鵬 (華東師範大)、辰巳 敬 (横国大)、TS-1 の新規合成およびベンゼンの直接酸化への応用、第 34 回石油・石油化学討論会、松山、2004. 11. 18-19
23. 横井 俊之 (横国大)、車 順愛 (上海交通大)、寺崎 治 (ストックホルム大)、辰巳 敬 (横国大)、アニオン界面活性剤を用いて合成されるメソポーラスシリカ (AMS) の合成メカニズム、第 20 回ゼオライト研究発表会、東京、2004. 11. 30-12. 1
24. Weibin Fan (横国大)、呉 鵬 (華東師範大)、辰巳 敬 (横国大)、Synthesis of Ti-rich TS-1 and its catalytic properties for liquid-phase oxidation of various organics, , 第 20 回ゼオライト研究発表会、東京、2004. 11. 30-12. 1
25. Pavuluri Srinivasu (横国大)、呉 鵬 (横国大)、辰巳 敬 (横国大)、Direct synthesis of Ti-SBA-15 and its applications for the oxidation of alkenes, 第 20 回ゼオライト研究発表会、東京、2004. 11. 30-12. 1
26. 林 成 (横国大)、吉武 英昭 (横国大)、辰巳 敬 (横国大)、非イオン性界面活性剤を用いた Cubic Ia3d 構造のメソポーラスシリカの合成、第 20 回ゼオライト研究発表会、東京、2004. 11. 30-12. 1

27. 廣瀬 久美（横国大），呉 鵬（華東師範大），窪田 好浩（横国大），辰巳 敬（横国大），ゼオライト触媒による不斉合成，第 20 回ゼオライト研究発表会，東京，2004. 11. 30-12. 1
28. 土門 佑輔（横国大），中西 哲也（横国大），山本 勝俊（東北大多元研），辰巳 敬（横国大），骨格内有機基含有ゼオライト（ZOL）の合成，第 20 回ゼオライト研究発表会，東京，2004. 11. 30-12. 1
29. 伊藤 実（横国大），吉武 英昭（横国大），辰巳 敬（横国大），白金担持メソポーラスカーボンの合成と構造解析，第 20 回ゼオライト研究発表会，東京，2004. 11. 30-12. 1
30. 中西 哲也（横国大），土門 佑輔（横国大），山本 勝俊（東北大多元研），辰巳 敬（横国大），MOR 構造を有する有機無機ハイブリッドゼオライトの合成，第 20 回ゼオライト研究発表会，東京，2004. 11. 30-12. 1
31. 山高 雄介（横国大），荒 陽一郎（横国大），横井 俊之（横国大），辰巳 敬（横国大），アニオン界面活性剤を用いて合成されるメソポーラスシリカ（AMS）の結晶構造と形態の制御，第 20 回ゼオライト研究発表会，東京，2004. 11. 30-12. 1
32. 金原 規之（横国大），伊藤 実（横国大），辰巳 敬（横国大），黒鉛化度の高いメソポーラスカーボンの合成，第 20 回ゼオライト研究発表会，東京，2004. 11. 30-12. 1
33. 荒 陽一郎（横国大），山高 雄介（横国大），横井 俊之（横国大），辰巳 敬（横国大），アニオン界面活性剤を用いて合成されるメソポーラスシリカ（AMS）における共構造規定剤（CSDA）の検討，第 20 回ゼオライト研究発表会，東京，2004. 11. 30-12. 1

(2005 年)

34. 横井 俊之（横国大），車 順愛（上海交通大），寺崎 治（ストックホルム大），辰巳 敬（横国大），アニオン界面活性剤を用いたメソポーラスシリカの合成，化学工学会第 70 回年会，名古屋大，2005. 3. 22-24
35. 大沼 良介（横国大），呉 鵬（華東師範大），窪田 好浩（横国大），辰巳 敬（横国大），ITQ-21 の構造安定性の検討，第 85 回日本化学会春季年会，神奈川大，2005. 3. 26-29
36. 林 幹夫（横国大），呉 鵬（華東師範大），窪田 好浩（横国大），辰巳 敬（横国大），MWW 型ゼオライトのシリル化条件の検討，第 85 回日本化学会春季年会，神奈川大，2005. 3. 26-29
37. 山高 雄介，荒 陽一郎，横井 俊之，窪田好浩，辰巳 敬，らせん状細孔を有するメソポーラスシリカ AMS の合成，第 85 回日本化学会春季年会，神奈川大，2005. 3. 26-29
38. 金原 規之（横国大），辰巳 敬（横国大），メソポーラスカーボンの合成における炭素源の検討，第 85 回日本化学会春季年会，神奈川大，2005. 3. 26-29
39. 荒 陽一郎（横国大），山高 雄介（横国大），横井 俊之（東大），窪田 好浩（横国大），辰巳 敬（横国大），様々な共構造規定剤（CSDA）を用いたメソポーラスシリカ AMS の合成，第 85 回日本化学会春季年会，神奈川大，2005. 3. 26-29
40. 日出 真由美（横国大），呉 鵬（華東師範大），窪田 好浩（横国大），辰巳 敬（横国大），メソポーラスカーボン CMK-3 を鋳型としたゼオライトの合成と構造解析，第 85 回日本化学会春季年会，神奈川大，2005. 3. 26-29
41. 西野 亜季子（横国大），Weibin Fan（横国大），窪田 好浩（横国大），辰巳 敬（横国大），TS-1 によるベンゼンの直接酸化反応，第 85 回日本化学会春季年会，神奈川大，2005. 3. 26-29

42. 山田 登士 (横国大), 窪田 好浩 (横国大), 辰巳 敬 (横国大), 有機修飾メソポーラスシリカによる酸塩基触媒反応, 第 85 回日本化学会春季年会, 神奈川大, 2005. 3. 26-29
43. 吉田 真理子 (横国大), 呉 鵬 (華東師範大), 窪田 好浩 (横国大), 辰巳 敬 (横国大), ボロシリケート MWW の層剥離条件の検討, 第 85 回日本化学会春季年会, 神奈川大, 2005. 3. 26-29
44. 横井 俊之 (東大)・大久保 達也 (東大)・辰巳 敬 (横国大), 規則的に配列したシリカナノ粒子の合成, 第 85 回日本化学会春季年会, 神奈川大, 2005. 3. 26-29
45. 辰巳 敬 (東工大), Weibin Fan (東工大), Peng Wu (華東師範大), Ti-ゼオライト触媒による過酸化水素酸化における溶媒効果, 石油学会第 48 回年会, 東京, 2005.5.16-17
46. 窪田好浩 (横浜国大), 吉田真理子 (横浜国大), 佐伯昌美 (岐阜大), 杉 義弘 (岐阜大), 辰巳 敬 (東工大), 有機基修飾 MCM-22 型触媒の構造制御と高機能化, 石油学会第 48 回年会, 東京, 2005.5.16-17
47. 日出真由美 (横浜国大), 呉 鵬 (華東師範大), 窪田好浩 (横浜国大), 辰巳 敬 (東工大), メソポーラスカーボンを鋳型としたチタノシリケートの合成とその触媒特性, 石油学会第 48 回年会, 東京, 2005.5.16-17
48. 金原規之 (横浜国大), 窪田好浩 (横浜国大), 辰巳 敬 (東工大), 石油ピッチを炭素源としたメソポーラスカーボンの合成, 石油学会第 48 回年会, 東京, 2005.5.16-17
49. Suman K. Jana (東工大), Yoshihiro Kubota (横浜国大), Takashi Tatsumi (東工大), Synthesis of cobalt containing heteropolyoxometalate-pillared hydrotalcite and its catalysis for liquid-phase oxidation of cyclohexanol with molecular oxygen, the 10th Japna-Korea Symposium on Catalysis, Matsuyama, Japan, May, 10-13, 2005.
50. 窪田好浩 (横浜国大), 池谷久徳 (岐阜大), 杉義弘 (岐阜大), 辰巳 敬 (東工大), 規則構造無機有機ハイブリッド触媒を用いた Michael 反応, 第 96 回触媒討論会, 熊本, 2005.9.20-23.
51. 林 幹夫 (横浜国大), 呉 鵬 (華東師範大), 窪田好浩 (横浜国大), 辰巳 敬 (東工大), 層間の広い MWW 型構造を持つ新規ゼオライト触媒の調製, 第 96 回触媒討論会, 熊本, 2005.9.20-23.
52. Weibin Fan (東工大), 呉 鵬 (華東師範大), 窪田好浩 (横浜国大), 辰巳 敬 (東工大), Preparation of Ti-rich Ti-YNU-1 and its catalytic properties for the oxidation of alkenes, 第 96 回触媒討論会, 熊本, 2005.9.20-23.
53. 山田登士 (横浜国大), 横井俊之 (東大), 荒 陽一郎 (横浜国大), 辰巳 敬 (東工大), 窪田好浩 (横浜国大), アニオン性界面活性剤を用いて合成したメソポーラスシリカの塩基触媒活性, 第 96 回触媒討論会, 熊本, 2005.9.20-23.
54. 日出真由美 (横浜国大), 呉 鵬 (華東師範大), 辰巳 敬 (東工大), 窪田好浩 (横浜国大), メソポーラスカーボンを鋳型としたチタノシリケートの合成とその触媒性能, 第 96 回触媒討論会, 熊本, 2005.9.20-23.
55. Xiangju Meng (東工大), 窪田好浩 (横浜国大), 辰巳 敬 (東工大), Improvement in thermal stability and catalytic activity of titanium species on mesoporous titanosilicates (MTS-9) by addition of ammonium salts, 第 96 回触媒討論会, 熊本, 2005.9.20-23.

56. 横井俊之（東大），岩間真理絵（東大），辰巳敬（東工大），大久保達也（東大），規則的に配列したナノ粒子状シリカの調製，第 96 回触媒討論会，熊本，2005.9.20-23.
57. T. Yokoi, M. Iwama, T. Tatsumi, T. Okubo, Synthesis of Well-Ordered Silica Nanoparticles by Self-Assembly, The 16th Symposium of MRS-J 2005, 東京, 2005.12.10-11.
58. 窪田好浩（横浜国大），小野敦史（横浜国大），村橋孝明（岐阜大），旭 祐子（岐阜大），杉 義弘，辰巳 敬（東工大），スルホ基固定化メソ多孔体の新規合成とエステル化反応への応用，石油学会盛岡大会（第 35 回石油・石油化学討論会）講演要旨，p.60 (2005). 2C10 2005. 10. 27-28.
59. 横井俊之（東大），岩間真理絵（東大），辰巳敬（東工大），大久保達也（東大），規則的に配列したナノ粒子状シリカの合成と応用，石油学会盛岡大会（第 35 回石油・石油化学討論会），2005. 10. 27-28.
60. Weibin Fan, 窪田好浩，辰巳 敬，Crystallization mechanism study on TS-1 in the presence of $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ ，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，p.5 (2005). A1 （豊橋）2005. 11. 21- 22.
61. Suman K. Jana, 窪田好浩，辰巳 敬，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，Synthesis of mesoporous gallium SBA-15 and its application in acid catalyzed organic transformation, p.67 (2005). B19 （豊橋）2005. 11. 21- 22.
62. 林 幹夫，呉鵬，窪田好浩，辰巳 敬，Ga 含有ゼオライト触媒を用いた Baeyer-Villiger 酸化反応，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，p.51-52 (2005). B5 総 （豊橋）2005. 11. 21- 22.
63. 大沼良介，窪田好浩，辰巳 敬，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，CHA 型ゼオライトの含有アルミ量の制御，p.19 (2005). A13 （豊橋）2005. 11. 21- 22.
64. 中西哲也，土門祐輔，稲垣怜史，窪田好浩，辰巳 敬，有機基含有ゼオライト(ZOL)の窒化処理，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，p.102 (2005). C11 （豊橋）2005. 11. 21- 22.
65. 山高雄介，荒 陽一郎，横井俊之，窪田好浩，辰巳 敬，らせん状細孔を有するメソポーラスシリカ AMS の形態制御と応用，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，p.36 (2005). A29 （豊橋）2005. 11. 21- 22.
66. 金春実，窪田好浩，辰巳 敬，大孔径 cubic Ia-3d メソポーラスシリカの合成・修飾と酸触媒としての応用，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，p.70 (2005). B22 （豊橋）2005. 11. 21- 22.
67. 横井俊之，窪田好浩，辰巳 敬，大久保達也，生体分子を用いた多孔質シリカの合成，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，p.31 (2005). A25 （豊橋）2005. 11. 21- 22.
68. 荒陽一郎，山高雄介，佐藤周作，横井俊之，窪田好浩，辰巳 敬，アミノ酸由来の界面活性剤を用いるメソ多孔体の合成，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，p.38 (2005). A31 （豊橋）2005. 11. 21- 22.
69. 日出 真由美，呉 鵬，窪田好浩，辰巳 敬，メソポーラスカーボンを鋳型としたチタノシリケートの合成とその応用，第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集，p.72 (2005).

(2006 年)

70. 齊藤敬史, Weibin Fan, 窪田 好浩, 辰巳 敬, TS-1 の触媒性能に与えるフッ化物イオンの影響, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-02, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
71. 笠原 稔, 辰巳 敬, 窪田 好浩, 8 員環ゼオライト SSZ-16 の合成・ポスト処理とキャラクター化, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-03, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
72. 土屋雄作, 窪田 好浩, 辰巳 敬, ボロシリケートゼオライト CIT-1 のポスト処理条件の検討, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-04, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
73. 渡邊雄一, S.P. Elangovan, 小倉 賢, 窪田好浩, 横井俊之, 大久保達也, CIT-1 の合成と HC trap としての応用, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-05, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
74. 中西哲也・稲垣怜史, 窪田 好浩, 辰巳 敬, 骨格内に有機基を含有する MOR 型ゼオライトの調製とその構造特性, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-10, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
75. 林 幹夫, 稲垣怜史, 呉 鵬, 窪田 好浩, 辰巳 敬, Ga-beta ゼオライトの Baeyer-Villiger 酸化反応に対する触媒特性, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-11, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
76. 小山啓人, 辰巳 敬, 窪田 好浩, 多次元ゼオライト MCM-68 の合成とキャラクター化, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-12, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
77. 荒 陽一郎, 山高雄介, 佐藤周作, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, アニオン性界面活性剤を用いる新規メソポーラスシリカの合成, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-28, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
78. 佐藤周作, 荒 陽一郎, 山高雄介, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 新規アミノ酸系界面活性剤を用いるメソポーラスシリカの合成, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-29, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
79. 金原規之, 窪田好浩, 辰巳 敬, メソポーラスカーボンの合成法と電気化学特性の相関, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-36, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
80. 金春実, 窪田好浩, 辰巳 敬, Cubic Ia-3d メソポーラスシリカの合成・修飾と酸触媒能, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-44, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
81. 小野敦史, 窪田好浩, 辰巳 敬, 規則性メソ多孔体触媒の合成・修飾とエステル化反応への応用, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-45, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
82. 横井俊之, 山高雄介, 荒 陽一郎, 佐藤周作, 窪田好浩, 辰巳 敬, キラルなメソポ

ーラスシリカの合成と応用, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 3 K6-43, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)

83. 規則的に配列した球状シリカナノ粒子の合成, ○横井俊之, 岩間真理絵, 渡邊亮太, 窪田好浩, 大久保達也, 阪本康弘, 寺崎 治, 辰巳 敬, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.12. (A7; December 5-6, 2006, タワーホール船堀, 東京) (December 5)
84. アミノ酸系界面活性剤を用いるメソポーラスシリカの合成とその構造制御, ○佐藤周作, 荒 陽一郎, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.14 (A9; December 5-6, 2006, タワーホール船堀, 東京) (December 5)
85. アダマンタン誘導体を構造規定剤としたゼオライトの合成, ○日出真由美, 大沼良介, 朱 慶軍, 稲垣怜史, 横井俊之, 野村淳子, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.24 (A18; December 5-6, 2006, タワーホール船堀, 東京) (December 6)
86. MCM-68 類似の新規マイクロポーラス結晶の合成とポスト処理, ○小山啓人, 池田卓史, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集 p.28 (A22; December 5-6, 2006, タワーホール船堀, 東京) (December 6)
87. 白金担持規則性多孔体カーボンの調製, キャラクターゼーションおよび触媒特性, ○金原規之, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.33 (B1; December 5-6, 2006, タワーホール船堀, 東京) (December 5)
88. 大孔径 *Ia-3d* メソポーラスシリカの合成・修飾と触媒特性, ○小野敦史, 金 春実, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.36 (B4; December 5-6, 2006, タワーホール船堀, 東京) (December 5)
89. CIT-1 のポスト処理条件と触媒特性, ○土屋雄作, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.43 (B11; December 5-6, 2006, タワーホール船堀, 東京) (December 5)
90. 層状シリケート PLS-1 の層間シリル化による新規ハイシリカゼオライトの調製, ○稲垣怜史, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.73 (C12; December 5-6, 2006, タワーホール船堀, 東京) (December 5)
91. 塩基性アミノ酸を用いる規則性球状ナノシリカの合成と応用, 横井俊之, 岩間真理絵, 渡邊亮太, 窪田好浩, 大久保達也, 辰巳敬, 石油学会鹿児島大会 (特別講演・受賞講演, 第 36 回石油・石油化学討論会) 講演要旨, p177 (2A18; November 30-December 1, 2006, Kagoshima) (December 1).
92. 新規ポーラスカーボンを鋳型としたメソポーラスアルミノシリケートの合成, 岩間真理絵, 横井俊之, 辰巳敬, 大久保達也, 石油学会鹿児島大会 (特別講演・受賞講演, 第 36 回石油・石油化学討論会) 講演要旨, p169 (2A12; November 30-December 1, 2006, Kagoshima) (December 1)
93. ベータ型メタロシリケートを前駆体とするメタロシリケート SSZ-24 の合成と触媒性能, ○窪田好浩, 前川弘吉, 宮田俊介, 杉 義弘, 辰巳 敬, 第 98 回触媒討論会・討論会 A 予稿集, p.377. (4I05; September 26-29, 2006, Toyama) (September 29)
94. 気相シリル化による MWW 型層状前駆体の層間修飾, ○稲垣怜史, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 98 回触媒討論会・討論会 A 予稿集, p.378. (4I06; September 26-29, 2006, Toyama) (September 29)

95. 新規メソポーラスチタノシリケートの合成と触媒特性, ○日出真由美, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 98 回触媒討論会・討論会 A 予稿集, p.381. (4I10; September 26-29, 2006, Toyama) (September 29)
96. ゼオライト CIT-1 を用いた Baeyer-Villiger 酸化反応, ○土屋雄作, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 98 回触媒討論会・討論会 A 予稿集, p.382. (4I11; September 26-29, 2006, Toyama) (September 29)
97. メソポーラスカーボンの合成・修飾と電気化学特性, ○金原規之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 石油学会第 49 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 55 回研究発表会) 講演要旨, p.73. (B08; May 18-19, 2006, Tokyo) (May 19)
98. MWW 型層状前駆体の層間シリル化处理とその固体酸触媒特性, ○稲垣怜史, 吳 鵬, 窪田好浩, 辰巳 敬, 石油学会第 49 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 55 回研究発表会) 講演要旨, pp.76-77. (B10; May 18-19, 2006, Tokyo) (May 19)

(2007 年)

99. 塩基性アミノ酸を用いたシリカナノ粒子の合成と応用, ○横井俊之, 岩間真理絵, 渡邊亮太, 窪田 好浩, 大久保 達也, 辰巳 敬, 第 99 回触媒討論会・討論会 A 予稿集, p.377. (2A08; March 28-29, 2007, 神戸大学) (March 29).
100. 塩基性アミノ酸を塩基源に用いたメソポーラスシリカの合成, 横井俊之, 辰巳敬, 日本化学会第87春季年会.□(講演予稿集CD-ROM, 1M2-35, March 25-28, 2007, 関西大学) (March 25).
101. 塩基性アミノ酸を用いたシリカナノ粒子の合成および粒径制御, 大塚雄樹, 岩間真理絵, 横井俊之, 下嶋敦, 辰巳敬, 大久保達也, 日本化学会第87春季年会.□ (講演予稿集CD-ROM, 3G5-04, March 25-28, 2007, 関西大学) (March 25).
102. キラルなメソポーラスシリカの合成法の改良,□ 横井俊之, V. Pierangeli, 窪田好浩, 辰巳 敬, 日本化学会第87春季年会.□ (講演予稿集CD-ROM, 1M2-34, March 25-28, 2007, 関西大学) (March 25).
103. メソポーラスシリカを用いたクマリン誘導体の合成,□石丸 稔, 辰巳 敬, 窪田好浩, 日本化学会第87春季年会.□(講演予稿集CD-ROM, 1M2-47, March 25-28, 2007, 関西大学) (March 25).
104. 多次元細孔チタノシリケートTi-MCM-68の合成と触媒性能,□小山啓人, 辰巳 敬, 窪田好浩, 日本化学会第87春季年会.□(講演予稿集CD-ROM, 3M2-43, March 25-28, 2007, 関西大学) (March 27).
105. キラルなメソポーラスシリカを不斉開始剤として用いる高エナンチオ選択的不斉自己触媒反応,□荒木裕子, 畑瀬国彦, 鈴木健太, 川崎常臣, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, そ合憲三, 日本化学会第87春季年会.□(講演予稿集CD-ROM, 3C6-13, March 25-28, 2007, 関西大学) (March 27)
106. 新規Ti含有規則性シリカナノ粒子の合成と触媒としての応用, 渡邊亮太, 横井俊之, 辰巳 敬, 日本化学会第87春季年会. (講演予稿集CD-ROM, 1M2-40, March 25-28, 2007, 関西大学千里山キャンパス) (March 25)
107. 塩基性水溶液中でのシリル化によるMWW型ゼオライト層状前駆体の層間拡張, 稲垣

- 怜史, 辻内翔, 横井俊之, 窪田好浩, 野村淳子, 辰巳 敬, 日本化学会第87春季年会.
(講演予稿集CD-ROM, 3M2-26, March 25-28, 2007, 関西大学千里山キャンパス) (March 27)
108. 水蒸気処理によるCHA型ゼオライトの脱アルミニウム, 稲垣怜史, 吉岡真人, 横井俊之, 窪田好浩, 野村淳子, 辰巳 敬, 日本化学会第87春季年会.(講演予稿集CD-ROM, 3M2-27, March 25-28, 2007, 関西大学千里山キャンパス) (March 27)
109. 少量のホウ素添加によるTi-MWWの結晶化, 稲垣怜史, 渡邊涼子, 横井俊之, 野村淳子, 辰巳 敬, 日本化学会第87春季年会.(講演予稿集CD-ROM, 3M2-30, March 25-28, 2007, 関西大学千里山キャンパス) (March 27).
110. 小林 剛, 今出侑希, 獅子原大介, 本間健司, 山田淳夫, 菅野了次, 渡邊亮太, 横井俊之, 辰巳 敬, 硫黄複合電極を用いたチオリシコン系固体リチウム電池, 粉体粉末冶金協会平成19年度秋季大会, 京都, 11月, 2007.
111. 小林 剛, 今出侑希, 獅子原大介, 本間健司, 山田淳夫, 菅野了次, 渡邊亮太, 横井俊之, 辰巳 敬, 硫黄複合電極を用いたチオリシコン系固体リチウム電池, 3B12, 第48回電池討論会, 11月, 2007.
112. 渡邊涼子・稲垣怜史・横井俊之・野村淳子・辰巳敬, Ti-MWW層状前駆体の層剥離処理における四級アンモニウム塩の影響, C26, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007
113. 吉岡真人・稲垣怜史・横井俊之・窪田好浩・辰巳敬, Ga量の異なる[Ga]-SSZ-13ゼオライトの合成, A18, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007.
114. 太田誠吾・横井俊之・渡邊亮太・野村淳子・辰巳 敬, 規則性球状シリカ粒子のカーボンレプリカを鋳型に用いたメソポーラス遷移金属酸化物の合成, A3, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007.
115. 藤田恭平, 横井俊之, 辰巳 敬, 窪田好浩, 新規アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカの合成, A10, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007.
116. 笠原 稔, 窪田好浩, 多孔性金属錯体の合成と触媒性能, B1, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007.
117. 小山啓人, 池田卓史, 辰巳 敬, 窪田好浩, MSE構造を有する新規ゼオライトの合成とポスト処理, C19, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007.
118. 池田卓史, 小山啓史, 辰巳 敬, 窪田好浩, MSE型マイクロポーラスYNU-2PおよびYNU-2の精密構造解析, C20, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007.
119. 稲垣怜史, Fan Weibin, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, ゼオライト層状前駆体の層間への有機基修飾, C22, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007.
120. 横井俊之・太田誠吾・渡邊亮太・野村淳子・辰巳 敬, 塩基性アミノ酸を用いたメソポーラスナノ粒子の合成, B14, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007.
121. 辻内翔・稲垣怜史・横井俊之・野村淳子・辰巳 敬, 種々のポスト処理によるMCM-22及びMCM-49層状前駆体の層間拡張, C24, 第23回ゼオライト研究発表会, 秋田, 11/7-8, 2007.
122. 田中 学・稲垣怜史・Lu Daling・横井俊之・野村淳子・辰巳 敬, チタンをドーブしたメソポーラス酸化タンタルの調製と触媒特性, 1F08, 第37回石油・石油化学討論会, 札幌, 10/25-26.

123. 太田誠吾・渡邊亮太・横井俊之・野村淳子・辰巳敬, 規則性シリカ粒子の合成における塩基性アミノ酸の役割, 1F10, 第37回石油・石油化学討論会, 札幌, 10/25-26.
124. 渡邊亮太, 太田誠吾, 横井俊之, 野村淳子, 辰巳 敬, 塩基性アミノ酸を用いて合成される球状シリカ粒子の粒径制御, 1F09, 第37回石油・石油化学討論会, 札幌, 10/25-26.
125. 小林 剛, 今出侑希, 獅子原大介, 本間健司, 山田淳夫, 菅野了次, 渡邊亮太, 横井俊之, 辰巳 敬, 硫黄複合電極を用いたチオリシコン系固体リチウム電池, 2M12, 電気化学会秋季大会, 東京, 9月
126. 横井 俊之, 若林 隼二, 大塚 雄樹, 範 偉, 岩間 真理絵, 下嶋 敦, 渡邊 亮太, 荒牧賢治, 大久保 達也, 辰巳 敬, 球状シリカナノ粒子の組織化による新しい規則性シリカ多孔体, B講演, 2A03, 第100回触媒討論会, 札幌, 9/17-20, 2007.
127. 横井俊之, 荒木裕子, 畑瀬国彦, 鈴木健太, 窪田好浩, 川崎常臣, 硯合憲三, 辰巳 敬, 塩基性アミノ酸添加法によるキラルシリカの合成と触媒としての応用, 4J17, 第100回触媒討論会, 札幌, 9/17-20, 2007.
128. 佐藤周作, 横井俊之, 辰巳 敬, 窪田好浩, アスパラギン誘導体を用いたAMSの合成とキャラクターゼーション, 3C26, 第100回触媒討論会, 札幌, 9/17-20, 2007.
129. 太田誠吾・渡邊亮太・横井俊之・野村淳子・辰巳敬, 新規規則性シリカナノ粒子のカーボンレプリカを用いた金属酸化物ナノ粒子の合成, 3D23, 第100回触媒討論会, 札幌, 9/17-20, 2007.
130. 吉岡真人・稲垣怜史・横井俊之・辰巳敬, 水蒸気処理によるハイシリカチャバザイトの調製, 3D16, 第100回触媒討論会, 札幌, 9/17-20, 2007.
131. 渡邊涼子・稲垣怜史・辰巳敬, Ti-MWW層状前駆体の層剥離処理条件の検討, 3D20, 第100回触媒討論会, 札幌, 9/17-20, 2007.
132. 渡邊亮太, 太田誠吾, 横井俊之, 野村淳子, 辰巳 敬, 塩基性アミノ酸を用いたシリカ粒子の粒径制御と応用, 4F24, 第100回触媒討論会, 札幌, 9/17-20, 2007.
133. 辻内翔・稲垣怜史・横井俊之・野村淳子・辰巳 敬, MWW層状前駆体の層間シリル化による高 Al-ILE-MWWの調製, 3D22, 第100回触媒討論会, 札幌, 9/17-20, 2007.
134. 嶋 寿・辰巳 敬・野村淳子, 赤外分光法によるチタノシリケート上での過酸化水素による酸化反応の直接観測, 4G23, 第100回触媒討論会, 札幌, 9/17-20, 2007.
135. 横井俊之・渡辺亮太・辰巳敬, T i 含有シリカ粒子の合成と応用, B 1 7, 石油学会第50回年会, 東京, 5/17-18, 2007.
136. 稲垣怜史・辻内翔・窪田好浩・辰巳敬, 層状シリケートP L S - 1 の層間シリル化とその吸着特性, B 1 9, 石油学会第50回年会, 東京, 5/17-18, 2007.

(2008年)

137. 太田誠吾, 渡辺亮太, 横井俊之, 野村淳子, 辰巳 敬, 新規多孔質材料を鋳型に用いたメソポーラス遷移金属酸化物の合成, 2L4-44, 日本化学会第88回春季年会, 東京, 3/26-30, 2008.
138. 唐牛拓己, 太田誠吾, 渡邊亮太, 横井俊之, 野村淳子, 辰巳 敬, 新規メソポーラスシリカナノ粒子の細孔経および粒子径制御, 2L-46, 日本化学会第88回春季年会, 東京,

3/26-30, 2008.

139. 田中 学, 稲垣怜史, 魯 大凌, 横井俊之, 野村淳子, 辰巳 敬, 結晶性メソポーラス酸化ニオブの合成と酸化反応特性, 2L4-42, 日本化学会第88回春季年会, 東京, 3/26-30, 2008.
140. 吉岡真人, 稲垣怜史, 横井俊之, 辰巳 敬, 脱ホウ素したRUB-13へのAlの導入, 2L2-08, 日本化学会第88回春季年会, 東京, 3/26-30, 2008.
141. 大塚彩乃, 稲垣怜史, 野村淳子, 辰巳 敬, 酸素8員環ミクロ孔をもつUZM-5ゼオライト上でのMTO反応, 2L2-07, 日本化学会第88回春季年会, 東京, 3/26-30, 2008.
142. 嶋 寿, 辰巳 敬, 野村淳子, 赤外分光法によるチタノシリケート上での酸化反応の直接観測, 1L-47, 日本化学会第88回春季年会, 東京, 3/26-30, 2008.
143. 渡邊涼子, 稲垣怜史, 横井俊之, 野村淳子, 辰巳 敬, Ti-MWW層状前駆体の層剥離の経時変化, 1L2-46, 日本化学会第88回春季年会, 東京, 3/26-30, 2008.

国際

1. Toshiyuki Yokoi (横国大), Hideaki Yoshitake (横国大), Takashi Tatsumi (横国大), Synthesis of Mesoporous Silica by Using Anionic Surfactant, The 14th International Zeolite Conference (IZC), Cape Town, South Africa, April 25-30, 2004.
2. Peng Wu (横国大), Weibin Fan (横国大), Duangamol Nuntasri (横国大), Takashi Tatsumi (横国大), MWW-type Titanosilicate: Novel Preparation and High Efficiency in the Epoxidation of Various Alkenes, The 14th International Zeolite Conference (IZC), Cape Town, South Africa, April 25-30, 2004.
3. Yoshihiro Kubota, Takashi Tatsumi, Promoting Effect of Ordered Porous Silicate on Base-catalyzed Aldol Reaction, The 229th ACS National Meeting, San Diego, 2005. 3. 13-17
4. Peng Wu (華東師範大), Yueming Liu (華東師範大), Minyuan He (華東師範大), Weibin Fan (東工大), Takashi Tatusmi (東工大), Selective liquid-phase oxidation reactions catalyzed by MWW structure-relating titanosilicates, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, Sapporo, Japan, 25-36, September, 2005.
5. A New Generation of Novel Titanosilicate Catalysts: Preparation and Application to Liquid Phase Epoxidation, 4th International Conference on Environmental Catalysis, Heidelberg, Germany, June 7, 2005
6. Baeyer-Villiger Oxidation with Hydrogen Peroxide over Zeolite Catalysts, Takashi Tatsumi, Mikio Hayashi, 2006 AIChE Annual Meeting, 476at, San Francisco Hilton, November 12-17, 2006.
7. Synthesis of silica nanospheres with well-ordered mesopores assisted by amino acids, T. Yokoi, M. Iwama, T. Okubo, Y. Sakamoto, O. Terasaki, Y. Kubota, T. Tatsumi, Abstracts, 5th International Mesoporous Materials Symposium (5th IMMS), pp.42-43. (Oral; August 5-7 2006, Shanghai) (August 6)
8. Synthesis of chiral mesoporous silica by using designed chiral anionic surfactant, T. Yokoi, Y. Yamataka, Y. Ara, Y. Kubota, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International

Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.62. (OB211; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)

9. Constructing New Zeolite Structures Through Molecular Alkoxysilylation of Lamellar Precursors, P. Wu, J. Ruan, L. Wang, L. Wu, Y. Wang, Y. Liu, S. Inagaki, M. Hayashi, W. Fan, M. He, O. Terasaki, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.67. (OB213; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)
10. Hydrothermal synthesis of metallosilicate SSZ-24 from metallosilicate beta as precursors, ○Y. Kubota, H. Maekawa, S. Miyata, T. Tatsumi, Y. Sugi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.63. (OB306; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 2)
11. T. Yokoi, M. Iwama, R. Watanabe, Y. Sakamoto, O. Terasaki, Y. Kubota, J. N. Kondo, T. Okubo, T. Tatsumi, "Synthesis of well-ordered nanospheres with uniform mesopores assisted by basic amino acids", Oral presentation, O-10-4, 15th International Zeolite conference, Beijing, China August 12-17, 2007.

③ ポスター発表 (国内会議 8 件、国際会議 51 件)
国内

1. 林 幹夫, 呉 鵬, 窪田好浩, 辰巳敬, メタロシリケート触媒を用いた Baeyer-Villiger 酸化反応, 石油学会第 48 回年会 (第 54 回研究発表会) 第 10 回 JPIJS ポスターセッション, 石油学会第 48 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 54 回研究発表会) 講演要旨集, p.7, 発表番号 : P25
2. 山田登士, 窪田好浩, 辰巳敬, 規則性メソポーラスシリカを用いるアルドール型反応, 石油学会第 48 回年会 (第 54 回研究発表会) 第 10 回 JPIJS ポスターセッション, 石油学会第 48 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 54 回研究発表会) 講演要旨集, p.7, 発表番号 : P26.
3. 有機基固定化 Ia-3d メソポーラスシリカの合成と固体酸触媒としての応用, □金 春実, 窪田好浩, 辰巳 敬, 石油学会第 49 回年会 (第 55 回研究発表会) 第 11 回 JPIJS ポスターセッション, 石油学会第 49 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 55 回研究発表会) 講演要旨集, p.9. □(P23; May 18-19, 2006, Tokyo) (May 19)
4. カーボン・Ti-SBA-15 複合体を前駆体とする新しいメソポーラスチタノシリケートの合成と触媒性能, □日出真由美, 窪田好浩, 辰巳 敬, 石油学会第 49 回年会 (第 55 回研究発表会) 第 11 回 JPIJS ポスターセッション, 石油学会第 49 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 55 回研究発表会) 講演要旨集, p.9. □(P26; May 18-19, 2006, Tokyo) (May 19)
5. 辻内翔, 稲垣怜史, 横井俊之, 野村淳子, 辰巳 敬, 酸性・塩基性条件下での MWW 型ゼオライト層状前駆体のシリル化による層間細孔の拡張, 石油学会第 12 回 JPIJS ポスターセッション, P42, 東京, 5/17-18, 2007.
6. 渡邊亮太, 横井俊之, 辰巳 敬, 規則的に配列したシリカナノ粒子の合成と応用新規チタン含有シリカナノ粒子の合成, 石油学会第 12 回 JPIJS ポスターセッション, P40, 東京, 5/17-18, 2007.
7. 渡邊涼子, 稲垣怜史, Fan Weibin, 辰巳敬, Ti-MWW 調製時のホウ素添加量の触媒活性への影響, 石油学会第 12 回 JPIJS ポスターセッション, P38, 東京, 5/17-18, 2007.

8. 吉岡真人, 稲垣怜史, 横井俊之, 辰巳敬, ハイシリカチャバザイトの調製のための水蒸気処理条件の検討, 石油学会第 12 回 JPIJS ポスターセッション, P34, 東京 5/17-18, 2007.

国際

1. Y.Kubota, T. Yamada, S. Miyata, Y. Sugi, T.Tatsumi, Acceleration of base-catalyzed aldol reaction by ordered porous silicate, 10th Japan-Korea Symposium on Catalysis, Extended Abstracts, P-107, pp. 327-328 (2005); Matsue, Japan, May 10-13, 2005. P-107.
2. P. Srinivasu, S. Lim, Y.Kubota, T.Tatsumi, Synthesis of highly ordered mesoporous P63/mmc and p6mm phases by adding alcohols to the system for the SBA-1 synthesis, 10th Japan-Korea Symposium on Catalysis, Extended Abstracts, P-110, pp. 333-334 (2005); Matsue, Japan, May 10-13, 2005. P-110
3. Pavuluri Srinivasu (横浜国大), Yoshihiro Kubota (横浜国大), 辰巳 敬 (東工大), Synthesis and characterization of MoKIT-6 large pore, cubic mesoporous molecular sieves, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, Sapporo, Japan, 25-36, September, 2005.
4. Mikio Hayashi (横浜国大), Peng Wu (華東師範大), Yoshihiro Kubota (横浜国大), Takashi Tatusmi (東工大), Baeyer-Villiger oxidation with hydrogen peroxide over BEA zeolite incorporating gallium into its framework, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, Sapporo, Japan, 25-36, September, 2005.
5. Weibin Fan (東工大), Peng Wu (華東師範大), Yoshihiro Kubota (横浜国大), Takashi Tatusmi (東工大), $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ as a crystallization-mediating agent for the synthesis of well-crystallized Ti-rich TS-1 with high oxidation activity, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, Sapporo, Japan, 25-36, September, 2005.
6. Xiangju Meng (東工大), Yoshihiro Kubota (横浜国大), Takashi Tatusmi (東工大), Improvement in thermal stability and catalytic activity of titanium species on mesoporous titanosilicates (MTS-9) by addition of ammonium salts, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, Sapporo, Japan, 25-36, September, 2005.
7. Suman K. Jana (東工大), Yoshihiro Kubota (横浜国大), Takashi Tatusmi (東工大), High catalytic performance of Ni-containing MgAl-hydrotalcite for liquid-phase selective oxidation of ethylbenzene to acetophenone with 1 atom of molecular O_2 , 5th World Congress on Oxidation Catalysis, Sapporo, Japan, 25-36, September, 2005.
8. T. Yokoi, Y. Ara, Y. Yamataka, Y. Kubota, T. Tatsumi, Synthesis of novel mesoporous silica AMS by using various co-structure directing agents (CSDA), Book of Abstracts and Recent Research Report, 3rd FEZA Conference (3rd International Federation of European Zeolite Associations conference), RR-13, Prague, Czech Republic, August 23-26, 2005.
9. W. Fan, Y. Kubota, T.Tatsumi, Ti-MWW, an effective catalyst for the oxidation of 1,4-dioxane with H_2O_2 , Book of Abstracts and Recent Research Report, 3rd FEZA Conference (3rd International Federation of European Zeolite Associations conference), RR-20, Prague, Czech Republic, August 23-26, 2005.
10. Xiangju Meng, Daling Lu, Yan Di, Yoshihiro Kubota, Takashi Tatsumi, Synthesis of Ultrafine Mesoporous Silica with Circular Channels by Fluorocarbon and Hydrocarbon Surfactants Mixture, Book of Abstracts and Recent Research Report, 3rd FEZA Conference (3rd International Federation of European Zeolite Associations conference), RR-21, Prague, Czech Republic, August 23-26, 2005.

11. P. Srinivasu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Direct synthesis and characterization of WSBA-1 cubic mesoporous molecular sieves, Book of Abstracts and Recent Research Report, 3rd FEZA Conference (3rd International Federation of European Zeolite Associations conference), RR-36, Prague, Czech Republic, August 23-26, 2005.
12. M. Hinode, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Synthesis, characterization and application of titanasilicate molecular sieves by using mesoporous carbon CMK-3 as a template, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 544, Nano-structured Catalysts for Environmental Conservation (#55)-464, December 15-20, 2005, Honolulu (December 18, 2005).
13. T. Yamada, Y. Kubota, T. Tatsumi, Synergistic effect of base and mesoporous silicate on the aldol reaction, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 544, Nano-structured Catalysts for Environmental Conservation (#55)-476, December 15-20, 2005, Honolulu (December 18, 2005).
14. M. Hayashi, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Layer-expansion of Ga-MWW by silylation, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 544, Nano-structured Catalysts for Environmental Conservation (#55)-502, December 15-20, 2005, Honolulu (December 18, 2005).
15. Y. Kubota, H. Ikeya, Y. Sugi, T. Tatsumi, Organic-inorganic hybrid base catalysts for the Michael reaction, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 544, Nano-structured Catalysts for Environmental Conservation (#55)-516, December 15-20, 2005, Honolulu (December 18, 2005).
16. Y. Ara, Y. Yamataka, T. Yokoi, Y. Kubota, T. Tatsumi, Synthesis of anionic-surfactant-templated mesoporous silica (AMS) by using co-structure directing agents (CSDA), 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications (#164)-1393, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
17. N. Kimpara, Y. Kubota, T. Tatsumi, Synthesis of mesoporous carbon by using petroleum pitches as carbon sources, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications (#164)-1415, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
18. Y. Yamataka, Y. Ara, T. Yokoi, Y. Kubota, T. Tatsumi, Synthesis of mesoporous silica AMS with twisted mesopores, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications (#164)-1416, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
19. R. Ohnuma, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Synthesis of ITQ-21 and its stability, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications (#164)-1419, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
20. T. Nakanishi, Y. Domon, K. Yamamoto, Y. Kubota, T. Tatsumi, Synthesis and characterization of organic-inorganic hybrid mordenite, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications (#164)-1420, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
21. Y. Kubota, T. Shibata, T. Ikeda, S. Suzuki, K. Komura, Y. Sugi, T. Tatsumi, Synthesis and characterization of MCM-68, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 907, Tuning Electronic Properties and Catalysis (#195)-1469, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
22. Toshiyuki Yokoi, Hayato Miyoshi, Masaru Ogura, Tatsuya Okubo, Synthesis of nanostructured manganese oxide using various surfactants for applications to electrochemical capacitor, 2005

International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA, December **2005**.

23. Toshiyuki Yokoi, Hayato Miyoshi, Masaru Ogura, Tatsuya Okubo, Synthesis of Nanostructured MnO₂ for Applications to Electrochemical Capacitor, Nanoporous Materials IV, Ontario, Canada, July **2005**.
24. Satoshi Inagaki, Mikio Hayashi, Peng Wu, Yoshihiro Kubota, Tatsumi Takashi, Novel Zeolite Catalyst by the Interlayer-Silylation of Layered MWW Precursor, The International Conference on Green & Sustainable Chemistry (GSC TOKYO 2006), Tokyo, Japan, 2006. 3. 8.

(2007年)

25. Synthesis of mesostructured silica with strongly hydrophilic surfactant templates, W. Fan, X. Meng, T. Yokoi, Y. Kubota, T. Tatsumi, Abstracts, 5th International Mesostructured Materials Symposium (5th IMMS), pp.174-175. (P-36; August 5-7 2006, Shanghai)
26. Selective alpha-alkylation of ketones with alcohols catalyzed by highly active basic mesoporous Pd/MgO-Al₂O₃ type solid derived from Pd-containing MgAl-hydrotalcite, S. K. Jana, Y. Kubota, T. Tatsumi, Abstracts, 5th International Mesostructured Materials Symposium (5th IMMS), pp.631-632. (P-264; August 5-7 2006, Shanghai)
27. Synthesis, modification, and catalytic performance of cubic Ia-3d mesoporous silica, C. Jin, Y. Kubota, T. Tatsumi, Abstracts, 5th International Mesostructured Materials Symposium (5th IMMS), pp.904-905. (RRR P-404; August 5-7 2006, Shanghai)
28. Synthetic investigation of zeolitic mesoporous titanosilicates by use of mesoporous carbon and their characterization, M. Hinode, P. Wu, T. Yokoi, Y. Kubota, T. Tatsumi, Abstracts, 5th International Mesostructured Materials Symposium (5th IMMS), pp.914-915. (RRR P-409; August 5-7 2006, Shanghai) (August 5)
29. Pore Size Control of Mesoporous Solid Acid Catalyst, K. Nakajima, I. Tomita, S. Hayashi, K. Domen, T. Tatsumi, and J.N. Kondo, Abstracts, 5th International Mesostructured Materials Symposium (5th IMMS), pp.42-43. (August 5-7 2006, Shanghai) (August 6)
30. Synthesis and characterization of carbon-based solid acid/mesoporous silica composites, M. Okamura, J.N. Kondo, K. Domen, T. Tatsumi, S. Hayashi, M. Hara, 5th International Mesostructured Materials Symposium (5th IMMS), pp.708-709. (P-305; August 5-7 2006, Shanghai) (August 5)
31. Asymmetric epoxidation catalyzed by (salen)Mn(III) complex loaded on MWW analogue, Y. Kubota, K. Hirose, P. Wu, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.63. (P1132; July 31-August 2, 2006, Yonago) (July 31)
32. GaCl₃-grafted SBA-15: synthesis and acid catalysis in liquid-phase organic transformations, S. K. Jana, Y. Kubota, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.97. (P2002; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)
33. A novel type of mesoporous titanosilicate replicated from mesoporous carbon, M. Hinode, T. Yokoi, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.107. (P2065; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)

34. Effect of ammonium salts on the synthesis and catalytic properties of TS-1, ○W. Fan, Y. Kubota, P. Wu, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.108. (P2070; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)
35. Synthesis of novel mesoporous silica by using newly designed amino acid derivative as a surfactant, ○Y. Ara, Y. Yamataka, S. Sato, T. Yokoi, Y. Sakamoto, O. Terasaki, Y. Kubota, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.111. (P2088; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)
36. Interlayer-expansion of MWW-type layered precursors with various SiO₂/Al₂O₃ ratios, S. Inagaki, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.117. (P2127; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)
37. Methanol to olefin over H/SSZ-13 zeolites, ○Q. Zhu, J. N. Kondo, R. Ohnuma, Y. Kubota, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.121. (P2150RRR; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)
38. Catalytic performance of amino-functionalized mesoporous silica synthesized by a novel synthesis route using an anionic surfactant, ○T. Yamada, T. Yokoi, T. Tatsumi, Y. Kubota, Abstracts, Fifth Tokyo Conference on Advanced catalytic Science and Technology (TOCAT5), p.255. (P-222; July 23-28, 2006, Tokyo) (July 25)
39. Preparation of interlayer-expanded Al-MWW-type zeolite by silylation, ○S. Inagaki, Y. Kubota, P. Wu, T. Tatsumi, Abstracts, Fifth Tokyo Conference on Advanced catalytic Science and Technology (TOCAT5), p.361. (P-401; July 23-28, 2006, Tokyo) (July 27)
40. Synthesis and characterization of carbon-based solid acid/mesoporous silica composites, M.Okamrua, J.N.Kondo, K.Domen, T.Tatsumi, S.Hayashi, M.Hara, Fifth Tokyo Conference on Advanced catalytic Science and Technology (TOCAT5), p.363. (P-403; July 23-28, 2006, Tokyo) (July 27)
41. Acid catalysis of fluorinated carbon-based solid acid, M. Toda, M. Okamura, A. Takagaki, J.N. Kondo, K. Domen, T. Tatsumi, S. Hayashi, M. Hara, Abstracts, Fifth Tokyo Conference on Advanced catalytic Science and Technology (TOCAT5), p.365. (P-406; July 23-28, 2006, Tokyo) (July 27)

(2007年)

42. Environmentally benign synthesis of well-ordered Ti-containing silica nanospheres,□ Toshiyuki Yokoi, Ryota Watanabe, Yoshihiro Kubota, Tatsuya Okubo, Takashi Tatsumi, Abstract, Japan/UK Joint Meeting, Japan/UK Green Sustainable, Chemistry Symposium, p.41.□ (GSC-P-15; March 27, 2007, Osaka).
43. Activities of Green & Sustainable Chemistry Network, Takashi Tatsumi, Abstract, Joint Meeting of the 1st Asian-Oceanian Conference on Green and Sustainable Chemistry and the 7th Annual Green and Sustainable Chemistry Symposium (GSC-AON2007), p.45.□ (S7-2; March 6-9, 2007, Tokyo) (March 9, 2007).
44. Synthesis, modification and catalytic performance of mesoporous silica containing thiol and sulfuric acid moieties, Y. Kubota, C. Jin, A. Ono, T. Tatsumi, Abstract, Joint Meeting of the 1st Asian-Oceanian Conference on Green and Sustainable Chemistry and the 7th Annual Green and Sustainable Chemistry Symposium (GSC-AON2007), p.114.□(Poster, A-52; March 6-9, 2007, Tokyo) (March 9, 2007).
45. Clarification on the Crystallization mechanism of Titanosilicate Zeolite,□ M. Tamura, T. Yokoi, T. Okubo, Abstract, Joint Meeting of the 1st Asian-Oceanian Conference on Green and

Sustainable Chemistry and the 7th Annual Green and Sustainable Chemistry Symposium (GSC-AON2007), p.110. (Poster, A-48; March 6-9, 2007, Tokyo) (March 9, 2007).

46. Environmentally benign synthesis of well-ordered silica nanospheres by using basic amino acids, T. Yokoi, M. Iwama, R. Watanabe, Y. Kubota, T. Tatsumi, Abstract, Joint Meeting of the 1st Asian-Oceanian Conference on Green and Sustainable Chemistry and the 7th Annual Green and Sustainable Chemistry Symposium (GSC-AON2007), p.111.□ (Poster, A-49; March 6-9, 2007, Tokyo) (March 9, 2007).
47. Studies on the acidic and basic interlayer silylation of Al-MWW layered precursor,□ S. Tsujiuchi, S. Inagaki, Y. Kubota, T. Tatsumi, Abstract, Joint Meeting of the 1st Asian-Oceanian Conference on Green and Sustainable Chemistry and the 7th Annual Green and Sustainable Chemistry Symposium (GSC-AON2007), p.239.□ (Poster, F-33; March 6-9, 2007, Tokyo) (March 9, 2007).
48. Synthesis of chiral mesoporous silica by using chiral anionic surfactant in the presence of basic amino acids, Vittorio Pierangeli, Toshiyuki Yokoi, Takashi Tatsumi, Abstract, Joint Meeting of the 1st Asian-Oceanian Conference on Green and Sustainable Chemistry and the 7th Annual Green and Sustainable Chemistry Symposium (GSC-AON2007), p.119, (Poster, A-57; March 6, 2007, Tokyo)
49. Synthesis of chiral mesoporous silica by using chiral anionic surfactant in the presence of basic amino acids, Vittorio Pierangeli, Toshiyuki Yokoi, Takashi Tatsumi, Abstract, Joint Meeting of the 1st Asian-Oceanian Conference on Green and Sustainable Chemistry and the 7th Annual Green and Sustainable Chemistry Symposium (GSC-AON2007), Student Forum of GSC-AON2007, (Poster, SF-47, March 6, 2007, Tokyo).
50. Sho Tsujiuchi, Satoshi Inagaki, Toshiyuki Yokoi, Yoshihiro Kubota, Takashi Tatsumi, “Interlayer-expansion of Al-MWW layered precursor by silylation under acidic and basic conditions”, SP-, Poster presentation, The 11th Korea-Japan Symposium on Catalysis. Soul, May 21-23, 2007.
51. R. Watanabe, T. Yokoi, T. Tatsumi, Synthesis of well-ordered Ti-containing silica nanospheres, SP-39, Poster presentation, The 11th Korea-Japan Symposium on Catalysis. Soul, May 21-23, 2007.

(4)特許出願

①国内出願 (5 件)

- ① 車 順愛、横井 俊之、坂本 一民、辰巳 敬、メソポーラスシリカ及びその製造方法、特許公開 2004-345895.
- ② 横井 俊之、辰巳 敬、シリカナノ粒子の新規調整法、特願 2005-067665.
- ③ 辰巳 敬・稲垣 怜史, 「アルミニウムを含むゼオライト層状前駆体からの大細孔ゼオライトの調製法」特願 2006-354034.
- ④ 辰巳 敬・稲垣 怜史, 「層状ケイ酸塩 PLS-1 からの層間修飾による新規ゼオライト様物質の調製法」特願 2007-132205
- ⑤ Takashi Tatsumi, Sachi Oikawa, Masami Fukao, Preparation of oximes by ammoxidation of ketones with MWW-type titanosilicate catalysts, JP2007001952, Jpn. Kokai. Tokkyo Koho (2007).

① 海外出願 (2 件)

1. 辰巳 敬、車 順愛、坂本 一民、Method to produce inorganic mesoporous substance

having chiral twisted structure, JP2004/136600、WO2005/105672

2. 横井 俊之、辰巳 敬、Regularly arranged nanoparticulate silica and process for producing the same、シリカナノ粒子の新規調整法、PCT / JP2006 / 304696、WO2006/095845

(5)受賞等

【受賞】

1. 辰巳 敬、触媒学会賞、2003 年
2. 辰巳 敬、文部科学大臣表彰 科学技術賞（研究部門）、2005 年
3. 辰巳 敬、平成 17 年度石油学会賞、2006 年
4. 辰巳 敬、平成 18 年度日本化学会賞、2007 年
5. 横井俊之、日本化学会第 84 年会 講演奨励賞 “アニオン界面活性剤を用いた特異な構造を有するメソポーラスシリカの合成”

【新聞】

1. 辰巳敬、「新型シリカ開発」、毎日新聞、**2004 年** 5 月 22 日
2. 横井俊之 他、「ナノサイズの穴 炭素を接着」、日本経済産業新聞、2006 年 8 月 30 日
3. 辰巳敬、横井俊之 他、「ナノサイズのシリカ粒子」、日本経済産業新聞、2006 年 9 月 5 日

国枝/荒牧 G

(1)原著論文発表 （国内誌 3 件、国際誌 2 7 件） 【JST が Acknowledge されているもののみ】

1. Y. Yamashita, H. Kuniueda, E. Oshimura, K. Sakamoto, Phase Behavior of N-Acylamino Acid Surfactant and N-Acylamino Acid Oil in Water., *Langmuir*, 19, 4070-4078 (2003)
2. D. Acharya, M.Arturo Lopez-Quitela, Hironobu Kunieda, Eiko Oshimura, Kazutami Sakamoto, Phase Behavior and Effect of Enantiomerism on Potassium N-Dodecanoyl Alaninate/Water/Decanol Systems., *J. Oleo Sci.*, 52, 407-420 (2003)
3. Durga P. Acharya, H. Kunieda, Formation of Viscoelastic Wormlike Micellar Solutions in Mixed Nonionic Surfactant Systems., *J. Phys. Chem. B*, 37, 10168-10175 (2003)
4. D. P. Acharya, Md. K. Hossain, Jin-Feng, T. Sakai, H. Kunieda, Phasa and Rheological Behavior of Viscoelastic Wormlike Micellar Solutions Formed in Mixed Nonionic Surfactant Systems., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 6, 1627-1630 (2004)
5. C. Rodriguez, D. Acharya, A. Maestro, K. Hattori, H. Kunieda, Effect of Nonionic Head Group Size on the Formation of Worm-Like Micelles in Mixed Nonionic/Cationic Surfactant Aqueous Systems. *J. Chem. Eng. Soc. Jpn*, 37 622-629 (2004)
6. Carlos Rodriguez-Abreu, Teruki Izawa, Kenji Aramaki, Arturo Lopez-Quitela, K.Sakamoto, H.Kunieda, Structural Evolution during the Synthesis of Mesoporous Silica

in Fatty Acid/Aminoalkoxysilane/Water/Systems, *J. Phys. Chem. B*, 108, 20083-20089 (2004)

7. C. Rodríguez, K. Aramaki, Y. Tanaka, M.A. López-Quintela, M. Ishitobi, H. Kunieda, Worm-like micelles and microemulsions in aqueous mixtures of sucrose esters and nonionic cosurfactants, *J. Colloid Interface Sci.*, 291, 560-569 (2005).
8. C. Rodríguez-Abreu, Durga P. Acharya, K. Aramaki, H. Kunieda, Structure and Rheology of Direct and Reverse Liquid Crystal Phases in a Block Copolymer/Water/Oil System, *Colloid Surf. A*, 269, 59-66 (2005)
9. Carlos Rodriguez-Abreu, Kenji Aramaki, Yusuke Tanaka, Manuel Arturo Lopez-Quintela, Masahiko Ishitobi, Hironobu Kunieda, Worm-like micelles and microemulsions in aqueous mixtures of sucrose esters and nonionic cosurfactants, *J. Colloid Interface Sci.*, 291, 560-569 (2005)
10. Carlos Rodríguez-Abreu, Durga P. Acharya, Kenji Aramaki, Hironobu Kunieda, Structure and Rheology of Direct and Reverse Liquid Crystal Phases in a Block Copolymer/Water/Oil System, *Colloid Surf. A*, 269, 59-66 (2005)
11. Jordi Esquena, Carlos Rodriguez, Conxita Solans, Hironobu Kunieda, Formation of Mesoporous Silica in Nonionic Fluorinated Surfactant Systems, *Micropor. Mesopor. Mater.*, 92, 212-219 (2006)
12. Lok Kumar Shrestha, Takaaki Sato, Durga P. Acharya, Tetsuro Iwanaga, Kenji Aramaki, Hironobu Kunieda, Phase Behavior of Monoglycerol Fatty Acid Esters in Non Polar Oils: Reverse Rod-Like Micelles at Elevated Temperatures, *J. Phys. Chem. B*, 110, 12266-12273 (2006).
13. Lok Kumar Shrestha, Kenji Aramaki, Hiroyuki Kato, Yoshihiro Takase, Hironobu Kunieda, Foaming Properties of Monoglycerol Fatty Acid Esters in Nonpolar Oil Systems, *Langmuir*, 22, 8337-8345 (2006)
14. Durga P. Acharya, Suraj Chandra Sharma, Carlos Rodriguez-Abreu, Kenji Aramaki, Viscoelastic Micellar Solutions in Nonionic Fluorinated Surfactant Systems, *J. Phys. Chem. B*, 110, 20224-20234 (2006)
15. Kenji Aramaki, Ulf Olsson, Self-Diffusion Study of Micelles in Poly(dimethylsiloxane)-Poly(oxyethylene) Diblock Copolymer and Poly(oxyethylene) Alkyl Ether Systems, *J. Colloid Interface Sci.*, 300, 354-360 (2006)
16. Lok Kumar Shrestha, Takaaki Sato, Durga P. Acharya, Tetsuro Iwanaga, Kenji Aramaki, Hironobu Kunieda, Phase Behavior of Monoglycerol Fatty Acid Esters in Non Polar Oils: Reverse Rod-Like Micelles at Elevated Temperatures, *J. Phys. Chem. B*, 110, 12266-12273 (2006)
17. Shrestha, L.K.; Sato, T.; Aramaki, K. Shape, Size, and Structural Control of Reverse Micelles in Diglycerol Monomyristate Nonionic Surfactant System. *J. Phys. Chem. B.*, 111, 1664-1671 (2007)
18. Carlos Rodríguez, Suraj Chandra Sharma, Kenji Aramaki, Formation of lamellar silica from lyotropic liquid crystals of dodecyl benzene sulfonic acid, *J. Dispers. Sci. Tech.*, 28, 7 (2007).
19. Durga P. Acharya, Suraj Chandra Sharma, Carlos Rodriguez-Abreu, Kenji Aramaki, Viscoelastic Micellar Solutions in Nonionic Fluorinated Surfactant Systems, *J. Phys. Chem. B*, 110, 20224-20234 (2006)
20. Shun Takahashi, Yasunari Ikkai, Carlos Rodriguez Abreu, Kenji Aramaki, Tetsu Ohsuna, Kazutami Sakamoto, Application of a Water Soluble Alkoxysilane for the Formation of Mesoporous Silica from Nonionic Surfactant Micelles Bearing Cholesterol, *Chem. Lett.*,

36, 182-183 (2007)

21. Shrestha, L.K.; Sato, T.; Aramaki, K. Shape, Size, and Structural Control of Reverse Micelles in Diglycerol Monomyristate Nonionic Surfactant System. *J. Phys. Chem. B*, 111, 1664-1671 (2007)
22. Rekha Goswami Shrestha, Lok Kumar Shrestha, Kenji Aramaki, Formation of Wormlike Micelle in a Mixed Amino-Acid Based Anionic Surfactant and Cationic Surfactant Systems, *J. Colloid Interface Sci.*, 311, 276-284 (2007)
23. Dharmesh Varade, Kousuke Ushiyama, Lok Kumar Shrestha, Kenji Aramaki, Wormlike Micelles in Tween-80/C_mEO₃ Mixed Nonionic Surfactant Systems in Aqueous Media, *J. Colloid Interface Sci.*, 312, 489-497 (2007)
24. Suraj C. Sharma, Carlos Rodriguez Abreu, Lok K. Shrestha, Kenji Aramaki, Short Haired Wormlike Micelles in Mixed Nonionic Fluorocarbon Surfactants, *J. Colloid Interface Sci.*, 314, 223-229 (2007)
25. L.K. Shrestha, T. Sato, K. Aramaki, Phase Behavior and Self-Organized Structures of Diglycerol Monolaurate in Different Nonpolar Organic Solvents, *Langmuir*, 23, 6606-6613 (2007)
26. Durga P. Acharya, Dharmesh Varade, Kenji Aramaki, Effect of Temperature on the Rheology of Wormlike Micelles in Mixed Surfactant System, *J. Colloid Interface Sci.*, 315, 330-336 (2007)
27. Lok K Shrestha, Suraj C Sharma, Takaaki Sato, Otto Glatter, Kenji Aramaki, Small-Angle X-ray Scattering (SAXS) Study on Nonionic Fluorinated Micelles in Aqueous System, *J. Colloid Interface Sci.*, 316, 815-824 (2007)
28. Dharmesh Varade, Carlos Rodriguez-Abreu, Lok Kumar Shrestha, Kenji Aramaki, Worm-Like Micelles in Mixed Surfactant Systems: Effect of Cosolvents, *J. Phys. Chem. B*, 111, 10438-10447 (2007)
29. Dharmesh Varade, Carlos Rodriguez-Abreu, Jose Gregorio Delgado, Kenji Aramaki, Viscoelasticity and Mass Transfer in Phenol-CTAB Aqueous Systems, *Colloid Polym. Sci.*, 285, 1741-1747 (2007)
30. Dharmesh Varade, Suraj Chandra Sharma, Kenji Aramaki, Viscoelastic Behavior of Surfactants Worm-like Micellar Solution in the Presence of Alkanolamide, *J. Colloid Interface Sci.*, 313, 680-685 (2007)

(2)その他の著作物 (総説、書籍など)

1. 國枝博信 化学便覧 応用化学編「界面活性剤」 日本化学会編 丸善 (2003)
2. 金子雅哉, 荒牧賢治, 國枝博信, 「第2章 乳化剤の開発と選択」, 「新しい乳化技術」情報機構, 33-49 (2004)
3. Md. H. Uddin, H. Kunieda, Phase behavior of A-B-type Silicone Copolymers, in 'Recent Research Developments in Surface & Colloids, Research Signpost (2004)
4. 國枝博信, 荒牧賢治, 「ナノテクノロジーを用いた剤刑設計-Worm-like ミセルとキュービック相乳化」 有用性化粧品、シーエムシー (2004)
5. C. Solans, J. Esquena, C. Rodriguez, H. Kunieda, "Highly concentrated (gel) emulsions : formation and properties", "Emulsions : Structure, Stability and Interactions" D. Petsev ed., Elsevier, 511-555 (2004)

6. 國枝博信, 荒牧賢治「多成分系の相挙動」, 界面と界面活性剤-基礎から応用まで-, 日本油化学会編, 日本油化学会, 88-93 (2005)
7. 荒牧賢治, 國枝博信「可溶化とマイクロエマルション」最新・界面活性剤の機能創製・素材開発・応用技術, 技術教育出版, (2005)
8. 國枝博信, 荒牧賢治, 佐藤高彰「序論-界面活性剤, 両親媒性高分子の自己組織化及び最新の構造測定法」界面活性剤・両親媒性高分子の最新機能, 第1章, 1-19 (2005)
9. 荒牧賢治, 國枝博信, 「界面活性剤溶液の相挙動と自己組織体の構造」, フレグランスジャーナル臨時増刊, 19, 2-9 (2005)
10. Wormlike Micelles in Mixed Surfactant Solutions, Durga P. Acharya, Hironobu Kunieda, Adv. Colloid Interface Sci., 123-126, 401-413 (2006)
11. 國枝博信, 荒牧賢治, 「機能性ソフトマター-マイクロエマルション」, エコマテリアルハンドブック, 丸善, 484-485 (2007)
12. 弓場三彩子, 荒牧賢治, 「界面活性剤溶液中の分子集合体構造とエマルション・マイクロエマルション」, 化学と教育, 55, 130-133 (2007)

(3)学会発表（国際学会及び主要な国内学会発表）【JST が Acknowledge されているもののみ】

④ 招待講演（国内会議 2 件、国際会議 4 件）

国内

1. 國枝博信（横国大）、環境適応型界面活性剤の物性、第 42 回日本油化学会年会、名古屋国際会議場、2003.9.19
2. 荒牧賢治（横国大）、界面活性剤水溶液の相図に基づくメソポーラスシリカ創製への水溶性シリカモノマーの活用、第 59 回コロイド及び界面化学討論会、北海道大学、札幌、2006.9.13

国際

1. Kenji Aramaki（横国大）、Phase Behavior and Self-Organized Structure of Sugar and Polyglycerol Surfactants, XXIX Reunion Bienal de la Real Sociedad Espanola de Quimica, Univ Complutense de Madrid, マドリッド、2003.7.9
2. Hironobu Kunieda（横国大）、Carlos Rodriguez（横国大）、Aqueous Visco-Elastic Surfactant Systems, 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials, パシフィコ横浜、2003.10.8-13
3. Hironobu Kunieda（横国大）、Formation of Visco-Elastic Wormlike Micelles in Mixed Surfactant Systems, 15th SIS, Fortaleza, Brazil, 2004.6.6-11
4. Hironobu Kunieda（横国大）、Aqueous Gels Formed by Nonionic Surfactant Solids, 229th ACS National Meeting, San Diego, USA, 2005.3.14

⑤ 口頭発表（国内会議 37 件、国際会議 16 件）

国内

1. 柴恵隆（横国大）、國枝博信（横国大）、Duruga Acharya（横国大）、荒谷健一（中京油脂）、新規陰イオンジェミニ型界面活性剤水溶液の粘弾性挙動、第 56 回コロイドおよび界面化学討論会、徳島大学、2003.9.9
2. 服部宏平太（横国大）、石井典子（横国大）、國枝博信（横国大）、イオン性界面活性剤/ポリオキシエチレンアルキルエーテル水溶液の粘弾性挙動、第 56 回コロイドおよび界面化学討論会、徳島大学、2003.9.9
3. 田中祐介（横国大）、國枝博信（横国大）、石飛雅彦（三菱化学）、ショ糖脂肪酸エステルによるゲルの形成、第 56 回コロイドおよび界面化学討論会、徳島大学、2003.9.9
4. 荒牧賢治（横国大）、H. Md. Khalid（横国大）、國枝博信（横国大）、両親媒性高分子と界面活性剤のラメラ液晶中での相溶性、第 42 回日本油化学会年会、名古屋国際会議場、2003.9.19
5. 金子雅哉（横国大）、松澤勝敏（横国大）、Md. Hemayet Uddin（横国大）、M. Artro Lopez-Quintela（サンチャゴ大）、國枝博信（横国大）、疎水性のポリジメチルシロキサン-ポリオキシエチレン共重合体と C12EO5 混合物の水における曇点と自己組織体構造、日本化学会第 83 春季年会、関西学院大学、西宮、2004.3.27

6. Md. Khalid Hossain (横国大)、Durga P. Acharya (横国大)、坂井隆也 (花王)、國枝博信 (横国大)、Phase Behavior of Polyoxyethylene Cholesterol Ether/ Novel Alkanolamide / Water Systems, 日本化学会第 84 春季年会, 関西学院大学、西宮, 2004.3.28
7. 荒牧賢治 (横国大)、Md. Khalid Hossain (横国大)、水/ポリオキシエチレン型界面活性剤/トリグリセリド系の相挙動と自己組織体形成, 日本化学会第 85 春季年会, 関西学院大学、西宮, 2004.3.28
8. 荒牧賢治 (横国大)、Otto Glatter (グラーツ大, オーストリア)、國枝博信 (横国大)、両親媒性高分子-界面活性剤混合系におけるミセル形成, 第 57 回コロイドおよび界面化学討論会, 山口東京理科大学, 2004.9.9
9. Carlos Rodriguez (横国大)、Hironobu Kunieda (横国大)、Formation of Worm-like Micelles and Microemulsions in Sucrose Fatty Acid Ester Aqueous Systems, 2004Japan-Australia International Symposium, 山口東京理科大学, 2004.9.9
10. 金子雅哉 (横国大)、T. Sottmann (ケルン大, ドイツ)、R. Strey (ケルン大, ドイツ)、國枝博信 (横国大)、水/PEG-CmEO_n-炭化水素系の相挙動と微細構造解析, 日本化学会第 85 春季年会, 神奈川大学, 2005 年 3 月 28
11. S.C.Sharma (横国大)、D.P.Acharya (横国大)、Y.Itami (ダイキン工業)、H.Kunieda (横国大)、Phase Behavior, Equilibrium and Dynamic Surface Tension Properties of Aqueous Solution of Amphiphilic Fluorinated Random Copolymers, 第 58 回コロイド及び界面化学討論会, 宇都宮大学, 2005 年 9 月
12. D.P. Acharya (横国大)、K. Aratani (中京油脂)、H. Kunieda (横国大)、Effect of Oil on the Rheological Behavior of Wormlike Micell in Mixed Surfactant Systems, 第 59 回コロイド及び界面化学討論会, 宇都宮大学, 2005 年 9 月
13. 平澤俊和 (横国大)、カルロス ロドリゲス (サンチャゴ大, スペイン)、荒牧賢治 (横国大)、アルトロ ロペス キンテーラ (サンチャゴ大, スペイン)、國枝博信 (横国大)、陰イオン性界面活性剤-シリカ前駆物質複合体の形成過程, 第 59 回コロイド及び界面化学討論会, 宇都宮大学, 2005 年 9 月
14. 弓場美彩子 (横国大)、池田直哲 (横国大)、佐藤高彰 (早大)、國枝博信 (横国大)、混合非イオン界面活性剤固体が形成する水和ゲルの構造, 第 59 回コロイド及び界面化学討論会, 宇都宮大学, 2005 年 9 月
15. 堀江亘 (東理大)、内藤昇 (コーセー)、紺野義一 (コーセー)、國枝博信 (横国大)、リン脂質-水系ゲルの生成と構造, 第 44 回日本油化学会年会, 慶応義塾大学, 2005 年 9 月
16. 池田直哲 (横国大)、弓場三彩子 (横国大)、國枝博信 (横国大)、イオン性-非イオン性界面活性剤混合物水溶液系のゲル形成, 第 44 回日本油化学会年会, 慶応義塾大学, 2005 年 9 月
17. 荒牧賢治 (横国大)、國枝博信 (横国大)、両親媒性高分子-界面活性剤混合系における分子集合体形成, 第 54 回高分子討論会, 山形大学, 2005 年 9 月

18. 船木陽子 (北里大), 平澤俊和 (横国大), 荒谷健一 (中京油脂), 國枝博信 (横国大), 直接連結型ジェミニ型界面活性剤水溶液の界面化学的物性と α -ゲル形成, 日本化学会第 86 春季年会, 日本大学, 2006 年 3 月
19. 池田直哲 (横国大), Renuka Acharya (横国大), 飛田和彦 (味の素), 佐川幸一郎 (味の素), 國枝博信 (横国大), 小角 X 線散乱法によるアミノ酸系界面活性剤ミセルの構造解析, 日本化学会第 86 春季年会, 日本大学, 2006 年 3 月
20. 一海康成 (東海大), Carlos Rodoriguez (サンチャゴ大, スペイン), 荒牧賢治 (横国大), 國枝博信 (横国大), 坂本一民 (資生堂), 高橋俊 (資生堂), 水溶性シリカ前駆物質を用いた中性条件でのメソポーラスシリカの合成, 日本化学会第 86 春季年会, 日本大学, 2006 年 3 月
21. Suraj Chandra Sharma (横国大), Carlos Rodriguez (サンチャゴ大, スペイン), 國枝博信 (横国大), 荒牧賢治 (横国大), Phase and rheological behavior in aqueous mixtures of fluorinated surfactant and hydrophobic fluorinated polymer, 日本化学会第 86 春季年会, 日本大学, 2006 年 3 月
22. Lok Kumar Shrestha (横国大), 金子雅哉 (横国大), 佐藤高彰 (早大), Durga Prasad Acharya (横国大), 岩永哲朗 (太陽化学), 加藤裕之 (太陽化学), 高瀬嘉彦 (太陽化学), 荒牧賢治 (横国大), 國枝博信 (横国大), Phase Behavior and Foaming Properties of Non-aqueous Foams Formed by Diglycerol Fatty Acid Esters in Non-polar Oils, 日本化学会第 86 春季年会, 日本大学, 2006 年 3 月
23. 弓場三彩子 (横国大), 三宅深雪 (ライオン), 福岡葉月 (ライオン), 荒牧賢治 (横国大), α -スルホ脂肪酸メチルエステルとパルミチン酸の Na 塩および K 塩混合系水和固体の融解挙動, 第 45 回日本油化学会年会, 東京理科大学, 野田, 2006.9.8
24. 安藤裕美 (横国大), 三宅深雪 (ライオン), 福岡葉月 (ライオン), 荒牧賢治 (横国大), α -スルホ脂肪酸メチルエステルナトリウム塩/ラウリン酸ナトリウム/水系での水和固体の構造, 第 45 回日本油化学会年会, 東京理科大学, 野田, 2006.9.8
25. 門坂英江 (横国大), 紺野義一 (コーセー), 内藤昇 (コーセー), 荒牧賢治 (横国大), リゾレシチンを用いたマイクロエマルジョンの形成, 第 45 回日本油化学会年会, 東京理科大学, 野田, 2006.9.8
26. 堀江亘 (横国大), 内藤昇 (コーセー), 紺野義一 (コーセー), 荒牧賢治 (横国大), 水/リゾレシチン系の相挙動に対する塩及びポリオール添加効果, 第 45 回日本油化学会年会, 東京理科大学, 野田, 2006.9.8
27. S.C. Sharma (横国大), D.Acharya (横国大), K.Aramaki (横国大), H.Kunieda (横国大), Formation of Viscoelastic Micellar Solution in Nonionic Fluorinated Surfactant Solution, 第 59 回コロイド及び界面化学討論会, 北海道大学, 札幌, 2006.9.13
28. L.Shrestha (横国大), H. Kato (太陽化学), Y.Takase (太陽化学), K.Aramaki (横国大), Foaming Properties of Mono and Diglycerol Fatty Acid Esters in Different Nonpolar Oils, 第 59 回コロイド及び界面化学討論会, 北海道大学, 札幌, 2006.9.13

29. R.G. Shrestha (横国大), L.K. Shrestha (横国大), K. Aramaki (横国大), Formation of Wormlike Micelle in Mixed Amino-Acid Based Anionic Surfactant and Cationic Surfactant Systems, 第59回コロイド及び界面化学討論会, 北海道大学, 札幌, 2006.9.13
30. 平澤俊和 (横国大), 藤原遥子 (横国大), 石川由布子 (資生堂), 渡辺啓 (資生堂), 高橋俊 (資生堂), 坂本一民 (資生堂), 荒牧賢治 (横国大), 水溶性シリカ前駆物質-界面活性剤系におけるゲル形成, 第59回コロイド及び界面化学討論会, 北海道大学, 札幌, 2006.9.13
31. 一海康成 (横国大), 高橋俊 (資生堂), 石川由布子 (資生堂), 坂本一民 (資生堂), 大砂哲 (早大), 荒牧賢治 (横国大), ホスト-ゲスト反応により合成された有機シリカハイブリットシートの構造, 第59回コロイド及び界面化学討論会, 北海道大学, 札幌, 2006.9.13
32. 池田直哲 (横国大), 飛田和彦 (味の素), 荒牧賢治 (横国大), アミノ酸系界面活性剤とモノグリセリド混合系の分子集合体構造, 第59回コロイド及び界面化学討論会, 北海道大学, 札幌, 2006.9.13
33. 弓場三彩子 (横国大), 三宅深雪 (ライオン), 山田研 (ライオン), 荒牧賢治 (横国大), α -スルホ脂肪酸メチルエステルとパルミチン酸のNa塩およびK塩混合系水和固体の構造解析, 日本化学会第87春季年会, 関西大学, 吹田, 2007.3.25
34. 平澤俊和 (横国大), 藤原遥子 (横国大), 永禮由布子 (資生堂), 渡辺啓 (資生堂), 高橋俊 (資生堂), 坂本一民 (資生堂), 荒牧賢治 (横国大), 水溶性シリカ前駆物質の添加による非イオン界面活性剤ミセルの形状変化, 日本化学会第87春季年会, 関西大学, 吹田, 2007.3.25
35. 牛山幸佑 (横国大), D.Varade (横国大), 荒牧賢治 (横国大), ポリ(オキシエチレン) ソルビタンオレイン酸エステル水溶液系における紐状ミセル形成, 日本化学会第87春季年会, 関西大学, 吹田, 2007.3.25
36. 藤原遥子 (横国大), 平澤俊和 (横国大), 永禮由布子 (資生堂), 渡辺啓 (資生堂), 坂本一民 (資生堂), 荒牧賢治 (横国大), 水溶性シリカ前駆物質/水/界面活性剤系におけるゲル形成, 日本化学会第87春季年会, 関西大学, 吹田, 2007.3.25
37. 松本洋平 (横国大), 井原啓一 (森永乳業), 朝岡宏 (森永乳業), 常廣岳史 (森永乳業), 浅野祐三 (森永乳業), Lok Kumar Shrestha (横国大), 荒牧賢治 (横国大), 乳タンパク質-界面活性剤混合水溶液系の表面物性, 日本化学会第87春季年会, 関西大学, 吹田, 2007.3.26

国際

1. Kenji Aramaki (横国大), Hossain Md. Khalid (横国大), Md. Hemayet Uddin (横国大), Hironobu Kunieda (横国大), Self-assembly of Pluronic and Poly(oxyethylene) Alkyl Ether in Water: Miscibility of Copolymer and Small Amphiphile, 77th Colloid and Surface Science Symposium, ジョージア工科大学, アトランタ, 2003.6.16

2. Durga Prasad Acharya (横国大), Hironobu Kunieda (横国大), Rheological Study of Viscoelastic Gel Formed in Mixed Nonionic Surfactant Systems, 77th Colloid and Surface Science Symposium, ジョージア工科大学, アトランタ, 2003.6.16
3. Masaya Kaneko (横国大), Hironobu Kunieda (横国大), Masao Tsukahara (コスモステクニカルセンター), Segregative Phase Separation in a Water/Poly(isoprene)-poly(oxyethylene) Block Copolymer System, 77th Colloid and Surface Science Symposium, ジョージア工科大学, アトランタ, 2003.6.16
4. Masaya Kaneko (横国大), Hironobu Kunieda (横国大), Masao Tsukahara (コスモステクニカルセンター), Self-organized Structure of a Mixture of Amphiphilic Block Copolymer and Nonionic Surfactant in Water, 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials, パシフィコ横浜, 2003.10.8-13
5. Durga Prasad Acharya (横国大), Kouheita Hattori (横国大), Hironobu Kunieda (横国大), Rheological Study of Viscoelastic Gel Formed in Mixed Surfactant Systems, 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials, パシフィコ横浜, 2003.10.8-13
6. Koheita Hattori (横国大), Durga Acharya (横国大), Takaya Sakai (花王), Hironobu Kunieda (横国大), The Viscoelasticity of Surfactant/Alkanolamide Systems, 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials, パシフィコ横浜, 2003.10.8-13
7. Kenji Aramaki (横国大), Ulf Olsson (ルント大, スウェーデン), Otto Glatter (グラーツ大, オーストリア), Hironobu Kunieda (横国大), Coexisting Micelles and Mixed Micelles in Water/Poly(oxyethylene)-Poly(dimethylsiloxane)/Poly(oxyethylene) Dodecyl Ether Systems, 15th SIS, Fortaleza, Brazil, 2004.6.6-11
8. Masaya Kaneko (横国大), Md. Hemayet Uddin (味の素), M. Arturo Lopez-Quintela (サンチャゴ大, スペイン), Hironobu Kunieda (横国大), Effect of Hydrophobic Chain Length of Silicone Block Copolymer on the Cloud Point and Liquid Crystal Structure of Nonionic Surfactant System, 18th Conference European Colloid and Interface Society, Almeria, Spain, 04-08, 2004.9.21
9. Carlos Rodriguez-Abreu (横国大), Teruki Izawa (横国大), Kenji Aramaki (横国大), Arturo Lopez-Quintela (サンチャゴ大, スペイン), Kazutami Sakamoto (味の素), Hironobu Kunieda (横国大), Structural Evolution During the Synthesis of Hybrid Materials in Organic Acid/Aminoalkoxysilane/Water Systems, 5th International Symposium on Biomimetic Materials Processing, 2005.1.26-28
10. Durga Prasad Acharya (横国大), Kouheita Hattori (横国大), Hironobu Kunieda (横国大), Phase and Rheological Behavior of Wormlike Micellar Solutions in Mixed Surfactant Systems, Australian Colloid and Interface Symposium, Sydney, Australia, 2005.2.13-17
11. Carlos Rodriguez (横国大), Hironobu Kunieda (横国大), Rheology and Dynamics of Micellar Cubic Phases and Related Emulsions Australian Colloid and Interface Symposium, Sydney, Australia, 2005.2.13-17

12. J. Esquena (スペイン国立高等研究機構), H. Kunieda (横国大), C. Solans (スペイン国立高等研究機構), Preparation of mesoporous silica templating in highly concentrated emulsions, Nanospain, Barcelona, 2005.3.14-17
13. K. Aramaki (横国大), S. Yanagimati (横国大), Effect of Adding Oil on Rheological Behaviour of Liquid Crystals, 7th World Congress of Chemical Engineering, Glasgow, UK, 2005 年 7 月
14. K. Sakamoto (資生堂), S. Takahashi (資生堂), Y. Ikkai (横国大), C.R. Abreu (サンチャゴ大, スペイン), K. Aramaki (横国大), Application of a Water Soluble Alkoxysilane for the Formation of Mesoporous Silica from Nonionic Surfactant Micelles Bearing Cholesterol Moieties, Surfactant in Solution 2006, Seoul, 2006.6.5
15. S.C. Sharma (横国大), D. Acharya (横国大), K. Aramaki (横国大), H. Kunieda (横国大), Phase and Rheological Behavior of Viscoelastic Wormlike Micellar Solutions Formed in a Nonionic Fluorinated Surfactant-Water System, Surfactant in Solution 2006, Seoul, 2006.6.5
16. L. Shrestha (横国大), D. Acharya (横国大), H. Kato (太陽化学), Y. Takase (太陽化学), T. Iwanaga (太陽化学), K. Aramaki (横国大), J. Gutierrez (バルセロナ大), H. Kunieda (横国大), Phase Behavior and Foaming Properties of Diglycerol Fatty Acid Esters in Nonaqueous Solvents, Surfactant in Solution 2006, Seoul, 2006.6.5

⑥ ポスター発表 (国内会議 0 件、国際会議 2 件)

1. D. Varade (横国大), K. Aramaki (横国大), H. Kunieda (横国大), R. Strey (ケルン大学), C. Stubenrauch (ダブリン大学), Disconnected Lamellar Phases (La) in Pseudobinary Water-Non-Ionic Surfactant Systems: A General Phenomenon, Surfactant in Solution 2006, Seoul, 2006.6.4-9
2. N. Ikeda (横国大), T. Sato (早大), K. Tobita (味の素), K. Aramaki (横国大), H. Kunieda (横国大), Small angle X-ray scattering study on the micelle structure of amino acid based surfactant, XIII International Conference on Small-angle Scattering 2006, 京都国際会館, 2006.7.7

(4) 特許出願

なし

(5) 受賞等

なし

吉武 G

(1)原著論文発表 (国内誌 0 件、国際誌 5 件) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

1. Hideaki Yoshitake, Yuko Aoki and Shinnosuke Hemmi, Mesoporous titania supported-molybdenum catalysts: the formation of a new mesophase and use in ethanol-oxygen catalytic reactions, *Microporous Mesoporous Mater.*, **93**(1-3), 294-303 (2006).
2. Takayuki Chujo, Yu Gonda, Yasunori Oumi, Tsuneji Sano and Hideaki Yoshitake, Novel Inorganic–Organic Layered Composite Synthesized by Polycondensation of 3-Aminopropyltriethoxysilane Associated with the Self-assembly of Alkanoate, *Chem. Lett.* **35**(10), 1198-1199 (2006).
3. Takayuki Chujo, Yu Gonda, Yasunori Oumi, Tsuneji Sano and Hideaki Yoshitake, Polymerisation of aminopropyltrialkoxysilane in the presence of carboxylate: a new layered organosilica mesocomposite built up using intermolecular interactions with LB film-type self-assembly, *J. Mater. Chem.*, **17**(14), 1372 – 1380 (2007).
4. Tomohisa Miyajima, Sébastien Abry, Wenjuan Zhou, Belén Albela, Laurent Bonneviot, Yasunori Oumi, Tsuneji Sano and Hideaki Yoshitake, Estimation of spacing between 3-bromopropyl functions grafted on mesoporous silica surfaces by a substitution reaction using diamine probe molecules. *J. Mater. Chem.*, in press.
5. Takayuki Chujo, Yu Gonda, Yasunori Oumi, Tsuneji Sano, Hideaki Yoshitake, Synthesis of Layered Organosilica Binding with Self-assembled LB film, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, accepted for publication

(2)その他の著作物 (総説、書籍など)

1. Hideaki Yoshitake, "Highly-controlled synthesis of organic layers on mesoporous silica: their structure and application to toxic ion adsorptions." *New J. Chem.*, **29**, 1107 – 1117 (2005).
2. Hideaki Yoshitake, "Functionalization of Periodic Mesoporous Silica and its Application to the Adsorption of Toxic Anions." G. E. Fryxell and B. Cao ed. *Environmental Applications of Nanomaterials*, Chapter 10, Imperial College Press, London, 2007.

(3)学会発表 (国際学会及び主要な国内学会発表) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

- ⑦ 招待講演 (国内会議 0 件、国際会議 0 件)
⑧ 口頭発表 (国内会議 8 件、国際会議 3 件)

1. 吉武英昭, XAFSによるオキシアニオンの吸着構造解析, SPring-8環境評価研究会 (第5回) 2006年7月24日メルパルク大阪
2. 青木優子、吉武英昭、杉原多恵、辰巳 敬, メソ細孔性チタニアに担持されたバナジウムの構造と酸化触媒作用, 第92回触媒討論会、2A03、平成15年9月18-21日、徳島郷土文化会館 (徳島市)
3. 青木優子、辰巳 敬、吉武英昭, メソポーラスモリブデンチタニア触媒の調製と構

造解析, 日本化学会第84春季年会, 3L1-48、西宮, 2004年3月

4. Hideaki Yoshitake, Functionalizations of mesoporous silica for adsorption of environmentally toxic oxyanions, Journée Scientifique du Laboratoire de Chimie, Les Matériaux, Jeudi 28 Avril 2005, Ecole Normal Supérieure de Lyon, France.
5. 中条貴幸、近江靖則、佐野庸治、吉武英昭, 界面活性剤－有機官能基間相互作用により構築される層状有機シリカの合成と機能, 第21回ゼオライト研究発表会、A10、豊橋、2005年11月21～22日
6. 宮島知久、吉武英昭, メソポーラスシリカ上にグラフとされたハロプロピル基間距離の見積り, 日本化学会春季年会、船橋、2006年3月27～30日
7. 宮島知久、吉武英昭、セバスチャンアブリ、ベレンアルベラ、ローランボンネヴィオ, 規則性メソポーラスシリカ表面に結合した有機官能基間距離の見積り, 第26回表面科学講演大会、2B02、大阪、2006年11月6～9日
8. 宮島知久、吉武英昭, 置換反応をプローブにした修飾メソポーラスシリカ上の官能基間距離評価の試み, 第22回ゼオライト研究発表会、C20、東京、2006年12月5～6日
9. 権田 優、吉武英昭, 超薄層3-アミノプロピルシリケートによるイオン吸着と長鎖カルボン酸との反応による層状構造固体の合成, 日本化学会第87春季年会、1K6-30、吹田、2007年3月25-28日
10. Hideaki Yoshitake, Nanofabrication of Organic Layers on Mesostructured Silica for Adsorption of Environmentally Toxic Oxyanions, JSPS A3 Foresight Program Seminar on “Synthesis and Applications of Mesoporous Materials” 5 March, 2007, Tokyo.
11. Yukari Eguchi, Daiki Abe and Hideaki Yoshitake, “Valence shifts and crystalline structures of mesoporous titania-supported transition metal catalysts.” 11th Korea-Japan Symposium on Catalysis, 21-23 May, 2007, Seoul, Korea.

⑨ ポスター発表 (国内会議 2 件、国際会議 10 件)

1. Sung Hyun Lim, Hideaki Yoshitake and Takashi Tatsumi, *d*-spacing expansion of lamellar molybdosilicate ($72\% \leq \text{Si/Mo} \leq 7\%$) derived from Mo-SBA-1 in $\text{Pm}\bar{3}n$ structure., The 9th Korea Japan Symposium on Catalysis, 14-17 May, 2003, Pohang, Korea.
2. Hideaki Yoshitake, Tae Sugihara and Takashi Tatsumi, EXAFS study on disorder in microstructure of amorphous mesoporous titania with $S_{\text{BET}} = 1230 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$, 12nd International Conference on X-ray Absorption Fine Structure (XAFS 12), 22-27 June 2003, Malmö, Sweden.
3. Hideaki Yoshitake, Tatsuya Yamauchi and Takashi Tatsumi, Pore wall structure of mesoporous tantalum oxide, Ta-TMS1, 4th International Mesostructured Materials Symposium, 1-4 May, 2004, Cape Town, South Africa.
4. Yuko Aoki, Takashi Tatsumi and Hideaki Yoshitake, Mesoporous titania-supported molybdenum catalyst, 13th International Congress on Catalysis, 11-16 July, 2004,

Paris, France.

5. 辺見新之介、青木優子、吉武英昭、メソポーラスチタニア担持タングステン触媒の調製と触媒作用, 第95回触媒討論会A、2P17、東京、2005年3月30～31日
6. 中条貴幸、吉武英昭、界面活性剤－有機官能基間のイオン性相互作用に誘起されるミセル形成と層状有機シリカの合成, 第95回触媒討論会A、2P42、東京、2005年3月30～31日
7. Hideaki Yoshitake, Yuko Aoki and Shinnosuke Hemmi, Oxidation Catalysis of Mesoporous Titania: Catalysis and Its Support Effect, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, 25-30 September 2005, Sapporo Convention Center, Sapporo, Japan. P3-075.
8. T. Chujo, Y. Oumi, T. Sano, H. Yoshitake, Layered organosilica structure induced by ionic interaction between surfactant and organic functional group, Pacifichem 2005, 15-20 December 2005, Honolulu.
9. S. Hemmi, H. Yoshitake, Preparation and catalysis of mesoporous titania-supported tungsten catalyst, Pacifichem 2005, 15-20 December 2005, Honolulu,
10. Yu Gonda, Hideaki Yoshitake, Preparation of 3-Aminopropylsilicate Ultra-Thin Layer and Adsorption of Transition Metal Cations and Anions, JSPS A3 Foresight Program Seminar on “Synthesis and Applications of Mesoporous Materials” 5 March, 2007, Tokyo.
11. Tomohisa Miyajima, Hideaki Yoshitake, Substitution of Bromine Atom by Diamines on Bromoalkyl-Functionalized Mesoporous Silica: Estimation of Effective Distance between Organic Groups on the Surface., JSPS A3 Foresight Program Seminar on “Synthesis and Applications of Mesoporous Materials” 5 March, 2007, Tokyo.
12. Yu Gonda and Hideaki Yoshitake, Structural transformation and ion adsorptions of ultrathin film of 3-aminopropylsilicate, 11th Korea-Japan Symposium on Catalysis, 21-23, May, 2007, Seoul, Korea.

(4)特許出願

①国内出願 (0 件)

②海外出願 (0 件)

(5)受賞等

①受賞 なし

②新聞報道 なし

③その他 なし

浅岡 G

(1)原著論文発表 (国内誌 0 件、国際誌 0 件) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

- 1) Asaoka, S.; Miyazaki, M.; Minohara, S.; Sakashita, K.; In *Science and Technology in Catalysis 2006*, K. Eguchi, M. Machida and I. Yamanaka, Eds.; Kodansha Elsevier, Tokyo, 2007; pp. 613-614.
- 2) 浅岡佐知夫、「ゼオライト・ナノ酸化物界面に発現する触媒機能」、触媒化成技報、vol.24、p3-12、2007.

(2)その他の著作物 (総説、書籍など)

Sachio Asaoka, Mitsuo Miyazaki, Shinji Minohara, Kouji Sakashita, “N₂O Removal from Flue Gas Using a Nanoporous Catalyst”, *Science and Technology in Catalysis 2006*, p613-614, 2007

(3)学会発表 (国際学会及び主要な国内学会発表) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

⑩ 招待講演 (国内会議 1 件、国際会議 11 件)

- 1 Sachio ASAOKA, “Catalysts and Reactions for Heavy Oil Hydrotreating /Hydrocracking”, 9th Japan/Kuwait Joint Symposium on Catalysis in Petroleum Refining, January 2008, Al-Ahmadi, Kuwait.
2. Sachio ASAOKA, “Technology State and the Future for Heavy Oil Based on Hydrogen Balance”, 9th Japan/Kuwait Joint Symposium on Catalysis in Petroleum Refining, January 2008, Al-Ahmadi, Kuwait.
3. 浅岡佐知夫、「エネルギー・環境問題に解を与える触媒技術-重質油処理から水素まで-」、石油学会 中国・四国支部第 27 回講演会、2007 年 12 月、徳山.
4. K. ITO, F. JAN AND S. ASAOKA, “Catalysis on Interface of Nano-oxide and Nano-zeolite”, 8th International Symposium on Fine Chemistry and Functional Polymers (FCFP-XVII), Shanghai, China, October 2007
5. Fi Jan, Kyosuke Ito, Sachio Asaoka(The University of Kitakyushu), “Catalysis modified with Chlorination and Chlorine Removal”, 9th International Symposium on Biotechnology Metal Complexes and Catalysis(BMC-IX), Xilinhhot, China, July 2007
6. Sachio ASAOKA, “Iso-paraffin Production on Nano-porous Catalyst Composed of Zeolite and Nano-Oxides”, 16th Japan/Saudi Arabia Joint Symposium, Dhahran, Saudi Arabia, November 2006
7. Sachio ASAOKA, “Gradation and Degradation of Functional Polymers for Catalysis”, 4th International Symposium on High-Tech Polymer Materials (HTPM-IV), Beijing, China, May 2006
8. Sachio ASAOKA, “Specification Trend of Clean Transportation Fuels”, 7th Japan/Kuwait Joint Symposium, Kuwait, November 2005
9. Sachio ASAOKA, “Reactions and Catalyst Design on Deep Hydrodesulfurization for Clean Transportation Fuels”, 7th Japan/Kuwait Joint Symposium, Kuwait, November 2005
10. S.ASAOKA, “Resin Catalyst Hybrids”, 15th International Symposium on Fine Chemistry and Functional Polymers (FCFP-XV), Shanghai, China, October 2005
11. Sachio ASAOKA, “Nono-pore Catalysis by Concerted Pore-structure”, 7th International Symposium on Biotechnology, Metal Complexes and Catalysis (BMC-VII), Beijing, China, July 2005
12. S.Asaoka, Y. Jin, “Zeolite Synthesis with Liquid-Repulsing Polymers”, 14th International Symposium on Fine Chemistry and Functional Polymers, Hohhot, China, August 2004

⑪ 口頭発表 (国内会議 13 件、国際会議 1 件)

- (ア) 伊藤亨亮、ジャンフィ、浅岡佐知夫、「ゼオライト・ナノ酸化物複合体の触媒作用」、第 23 回ゼオライト研究発表会、秋田、2007 年 11 月

- (イ) 伊藤亨亮、J.Fi、浅岡佐知夫、「ナノ複合触媒によるイソパラフィンの合成」、第 37 回石油・石油化学討論会、札幌、2007 年 10 月
- (ウ) 伊藤亨亮、Fi Jan、浅岡佐知夫、「複合触媒によるノルマルパラフィンの分解・異性化」、石油学会第 56 回研究発表会、東京・船堀、2007 年 5 月
- (エ) ジャン フィ、伊藤亨亮、浅岡佐知夫、「BEA ゼオライトの合成条件の速度論の検討」、第 22 回ゼオライト研究発表会、東京・船堀、2006 年 12 月
- (オ) 簗原伸二、伊藤亨亮、重藤真美、浅岡佐知夫、「BEA ゼオライトとナノ酸化物複合ナノポーラス系 Rh 触媒による N₂O の分解」、第 22 回ゼオライト研究発表会、東京・船堀、2006 年 12 月
- (カ) 伊藤亨亮、ジャンフィ、簗原伸二、浅岡佐知夫、「ゼオライトとナノ酸化物からなるナノポーラス触媒によるイソパラフィン製造（1）重質直鎖パラフィンの分解・異性化」、第 36 回石油・石油化学討論会、鹿児島、2006 年 11 月
- (キ) ジャンフィ、末崎千恵、伊藤亨亮、簗原伸二、浅岡佐知夫、「ゼオライトとナノ酸化物からなるナノポーラス触媒によるイソパラフィン製造（2）直鎖パラフィンの骨格異性化」、第 36 回石油・石油化学討論会、鹿児島、2006 年 11 月
- (ク) Sachio Asaoka, Kyosuke Ito, Shinji Minohara, M. Ashraf Ali, and H. Saeed Bamufleh, “Principle Design and Trial for Hydrotreating/Hydrocracking Catalyst” 232ndACS National Meeting, San Francisco, California, September 2006
- (ケ) 浅岡佐知夫、Fi Jan、Jin Wang、Yungjie Jin、黎曉紅、朝見賢二、藤元薫、「メタノール/DME からの C₃ および C₄ 合成」、石油学会 第 55 回研究発表会、東京・船堀、2006 年 5 月
- (コ) 有田真樹、簗原伸二、金英傑、浅岡佐知夫、「触媒用ナノポーラス表面を有したゼオライト調製」、第 21 回ゼオライト研究発表会、豊橋、2005 年 11 月
- (サ) 有田真樹、ジャンフィ、簗原伸二、浅岡佐知夫、「ナノポーラス表面を有したゼオライト触媒によるパラフィンの骨格異性化」、第 35 回石油・石油化学討論会、盛岡、2005 年 10 月
- (シ) 簗原伸二、伊藤亨亮、有田真樹、浅岡佐知夫、「水素化・分解異性化触媒のナノポーア概念での設計」、第 35 回石油・石油化学討論会、盛岡、2005 年 10 月
- (ス) 浅岡、金、有田、簗原、八木、「触媒用中位結晶性ゼオライトの合成」、第 20 回ゼオライト研究発表会、東京、2004 年 12 月
- (セ) 浅岡、M.A.Ali、金、簗原、「深度脱硫・水素化分解用触媒のナノポーア触媒概念での原理的設計」、第 34 回石油・石油化学討論会、松山、2004 年 11 月

⑫ ポスター発表 (国内会議 0 件、国際会議 3 件)

1. Sachio Asaoka, Mitsuo Miyazaki, Shinji Minohara and Kouji Sakashita, “N₂O removal from flue-gas with nano-porous catalyst”, TOCAT5, Tokyo, Japan, July 2006
2. Kyosuke Ito, Shinji Minohara and Sachio Asaoka, “Catalytic Properties on Tri-modally Nano-porous Catalyst Composed of Zeolite and Nano-porous Oxides”, International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals(ZMPC2006), Yonago, Tottori, Japan, July 2006
3. Shinji MINOHARA, Masaki ARITA, Fuyuki YAGI and Sachio ASAOKA, ”The Consortium Catalyst composed of Zeolite and Nano-porous Surface”, Pacificchem2005, Honolulu, Hawaii , December 2005

(4)特許出願

①国内出願 (2 件)

《発明の名称、発明者、出願人、出願日、出願番号》

1. ゼオライトの製造方法、浅岡、(独) 科学技術振興機構、2004.08.04、特願 2004-228036 号
2. ナノポーラスゼオライト触媒表面を持つ触媒の調製方法、浅岡・簗原・有田、(独) 科学技術振興機構、2005.03.03、特願 2005-59091

②海外出願 (0 件)

(5)受賞等

①受賞

②新聞報道

岩本G

(1)原著論文発表 (国内誌 5 件、国際誌 29 件) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

1. T. Hanzawa, Y. Watanabe, H. Satoh, M. Iwamoto, Purification and concentration of phosphorous in municipal wastewater by zirconium sulfate-surfactant micelle mesostructure, *Chem. Water and Wastewater Treat*, 9, in press.
2. T. Sawada,* T. Yano, N. Isshiki, T. Isshiki, M. Iwamoto, Preparation of Mesoporous Silica with Well-Defined Hexagonal Array of Pores by Using Octyltrimethylammonium Chloride, *Bull. Chem. Soc. Jpn*, 81, 407-409 (2008)
3. H. Ishitani, H. Naito, and M. Iwamoto, Friedel-Crafts Acylation of Anisole with Carboxylic Anhydrides of Large Molecular Sizes on Mesoporous Silica Catalyst, *Catal. Lett.*, 120, 14-18 (2008)
4. K. Ikeda, Y. Kawamura, T. Yamamoto, M. Iwamoto, Effectiveness of the template-ion exchange method for appearance of catalytic activity of Ni-MCM-41 for the ethene to propene reaction, *Catal. Commun.*, 9, 106-110 (2008)
5. A. Matsumoto, D. Furukawa, Y. Mori, T. Tanaka, K. Oka, Change in Crystal Structure and Polymerization Reactivity for the Solid-State Polymerization of Muconic Esters, *Crystal Growth & Design*, 7, 1078-1085 (2007)
6. T. Tanaka, H. Ogino, and M. Iwamoto, Photo-change in Pore Diameters of Azobenzene-Planted Mesoporous Silica Materials, *Langmuir*, 23, 11417-11420 (2007)
7. K. Ishizu, F. Hayashi, and M. Iwamoto, Rapid and Deep Nitridation of Silica MCM-41 without Loss of Hexagonal Pore Structure, *Chem. Lett*, 36, 1416-1417 (2007)
8. M. Iwamoto, Y. Kosugi, Highly Selective Conversion of Ethene to Propene and Butenes on Nickel Ion-Loaded Mesoporous Silica Catalysts, *J. Phys. Chem. C*, 111, 13-15 (2007).
9. S. Lee, K-Y. Lee, S-H. Lee, M. Iwamoto, Change in exchange capacity for phosphate ion with the preparation methods of zirconium-surfactant mesostructures, *Environmental Tech.*, 27, 563-568 (2006).
10. H. Okada, N. Nakajima, T. Tanaka, M. Iwamoto, Improvement in Photocyclization Efficiency of Diaryl Ethenes by Adjusting Pore Size of Mesoporous Silica, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 44, 7233-7236 (2005).
11. P. Wu, Y. Liu, M. He, M. Iwamoto, Postsynthesis of Hexagonally Packed Porous Zirconium Phosphate through a Novel Anion Exchange between Zirconium Oxide Mesophase and Phosphoric Acid, *Chem. Mater.*, 17, 3921-3928 (2005).
12. Masakazu Iwamoto, Unusual Acid Catalysis of Mesoporous Silica, 3rd COE Inter. Symposium on Nanochemistry, Waseda, 10-12 (2005)
13. Haruro Ishitani, Hiroyoshi Naito, Atsushi Okita, Masakazu Iwamoto, Friedel-Crafts Reactions over Mesoporous Materials, 10th Japan-Korea Symposium on Catalysis, 113-114 (2005)
14. Haruro Ishitani, Seiichiro Oohashi, Koue Teraguchi, Masakazu Iwamoto, Asymmetric Oxidation of Sulfide over Ti-MCM-41 in the presence of Tartaric Acid Derivatives, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, 268-269 (2005)
15. Yoichi Ihori, Yasuhiro Yamashita, Haruro Ishitani, Shu Kobayashi, Chiral Zirconium Catalysts using multidentate BINOL derivatives for Catalytic Enantioselective Mannich-type Reactions; Ligand Optimization and Approaches to Elucidation of Catalyst Structure, *J. Am. Chem. Soc.*, 127, 15528-15535 (2005)
16. Shu Kobayashi, Kenzo Arai, Haruka Shimizu, Yoichi Ihori, Haruro Ishitani, Yasuhiro Yamashita, A Novel Dinuclear Chiral Niobium Complex for Lewis Acid Catalyzed Enantioselective Reactions: Design of a Tridentate Ligand and Elucidation of the Catalyst Structure, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 44, 761-764 (2005)
17. M. Takaoka, T. Yamamoto, T. Tanaka, N. Takeda, K. Oshita and T. Uruga, Direct speciation of lead, zinc and antimony in fly ash from waste treatment facilities by XAFS spectroscopy, *Physica Scripta*, T115, 943-945 (2005)
18. Y. Nagai, T. Yamamoto, T. Tanaka, T. Nonaka, and A. Suda, Study on the

- thermal degradation of CeO₂-ZrO₂ solid solution by XAFS and XRD, *Physica Scripta*, T115, 664-666 (2005)
19. M. Takaoka, T. Yamamoto, A. Shiono, N. Takeda, K. Oshita, T. Matsumoto and T. Tanaka: The effect of copper speciation on the formation of chlorinated aromatics on real municipal solid waste incinerator fly ash, *Chemosphere*, 59, 1497-1505 (2005)
 20. M. Takaoka, S. Fukutani, T. Yamamoto, M. Horiuchi, N. Satta, N. Takeda, K. Oshita, M. Yoneda, S. Morisawa and T. Tanaka, Determination of chemical form of antimony in contaminated soil around a smelter using X-ray absorption fine structure, *Anal. Sci.*, 21, 769-773 (2005)
 21. M. Takaoka, A. Shiono, T. Yamamoto, T. Uruga, N. Takeda, T. Tanaka, K. Oshita, T. Matsumoto and H. Harada, Dynamic change of copper in fly ash during de novo synthesis of dioxins, *Environ. Sci. Technol.*, 39, 5878-5884 (2005)
 22. Y. Sekine, S. Sugita, T. Shido, T. Yamamoto, Y. Iwasawa, T. Kadono and T. Matsui, The role of Fischer-Tropsch catalysis in the origin of methane-rich Titan, *Icarus*, 178, 154-164 (2005)
 23. Akikazu Matsumoto, Toshihiro Tanaka, Kunio Oka, Stereospecific Radical Polymerization of Substituted Benzyl Muconates in the Solid State Under Topochemical Control, *Synthesis*, 1479-1490 (2005)
 24. Akikazu Matsumoto, Toshihiro Tanaka, Polymer Crystal Engineering for Control of Stereochemical Structure of Polymers: Stereospecific Monomer Synthesis and Stereospecific Solid-State Polymerization, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 440, 215-222 (2005)
 25. Shinya Oshita, Toshihiro Tanaka, Akikazu Matsumoto, Synthesis of New Stereoregular Host Polymers for Organic Intercalation by Solid-state Hydrolysis Using Layered Syndiotactic Polymer Crystals, *Chem. Lett.*, 34, 1442-1443 (2005)
 26. Y. Kuroda and M. Iwamoto, Characterization of Cuprous Ion in High Silica Zeolites and Reaction Mechanism of Catalytic NO Decomposition and Specific N₂ Adsorption, *Topics in Catal.*, 28, 111-119 (2004).
 27. H. Takada, Y. Watanabe, M. Iwamoto, Zirconium Sulfate-Surfactant Micelle Mesostructure as an Effective Remover of Selenite Ion, *Chem. Lett.*, 62-63 (2004).
 28. M. Iwamoto, Y. Kosugi, T. Yamamoto, Conversion of ethene to propene through dimerization and subsequent metathesis on nickel ion-loaded mesoporous silica catalyst, *Inter. Congr. on Catal.*, 145 (2004)
 29. H. Ishitani, M. Iwamoto, Friedel-Crafts reactions on mesoporous silica materials, 12th Taiwan-Japan Joint Symp. on Catal., Kofu, 71-75 (2004)
 30. M. Iwamoto, Y. Tanaka, N. Sawamura, S. Namba, Remarkable Effect of Pore Size on the Catalytic Activity of Mesoporous Silica for the Acetalization of Cyclohexanone with Methanol, *J. Am. Chem. Soc.*, 125, 13032-13033 (2003).
 31. M. Iwamoto, Introduction of Environmental Catalysis, *Shokubai*, 44, 532-534 (2003).
 32. H. Ishitani, M. Iwamoto, Selective Aldol Reactions of Acetals on Mesoporous Silica Catalyst, *Tetrahedron Lett.*, 44, 299-301 (2003)
 33. M. Iwamoto, H. Yahiro, Zeolites in Science and Technology of Removal of Nitrogen Monoxide, *Handbook of Zeolite Science and Technology*, P. K. Dutta Ed., Marcel Dekker, Inc., New York, 951-978 (2003).
 34. M. Iwamoto, Catalytic Reactions Newly Developed on the Surface of Mesoporous Materials, *Adv. Chem. Ser.*, 1, 163-170 (2003).

(2)その他の著作物 (総説、書籍など)

1. 岩本正和, メソポーラスシリカの表面修飾と高機能性, 多孔体の精密制御と機能・物性評価, 417-423 (2008)
2. 岩本正和、石谷暖郎, 規則性ナノ空間の触媒化学, 固定化触媒のルネッサンス,

- 166-180 (2007)
3. 岩本正和, シリカナノ多孔体の合成とファインケミカルへの応用, ケイ素化合物の選定と最適利用技術, 下巻, pp.56-67, 技術情報協会(2006).
 4. 岩本正和, 規則性ナノ空間触媒化学の黎明, ペトロテック, 29, 661-666 (2006).
 5. 岩本正和, 規則性無機ナノ空間が創り出す新しい触媒能, TCIメール, 130, 2-14 (2006).
 6. 岩本正和, 規則性ナノ空間が創り出す新しい酸触媒能, 触媒, 48, 21-26 (2006).
 7. 岩本正和, プラスチック原料をエタノールから合成, 化学, 62, 73-73 (2006).
 8. 岩本正和, 規則性ナノ空間が示す不思議な触媒能, 化学と工業, 58, 544-548 (2005).
 9. 岩本正和, シリカナノ空間の特異性を利用したファインケミカル合成, ファインケミカル, 34, 5-10 (2005).
 10. 岩本正和, 規則性ナノ空間の特異な触媒能と機能, 化学工業, 56, 169-173 (2005).
 11. 高田仁, 岩本正和, 硫酸根をキーマテリアルとする新規アニオン交換体の調製, 硫酸と工業, 58, 29-35 (2005).
 12. 岩本正和, メゾポーラス物質が示す規則性ナノ空間の不思議と魅力, 化学と教育, 52, 512-515 (2005).
 13. 岩本正和, 日本は少子化をどう克服するか, 未来材料, 5, (4) 1-1 (2005)
 14. 岩本正和, 規則性無機ナノ多孔体の調製とその利用, 日本化学会編実験化学講座第5版, 第28巻, 77-93 (2005).
 15. 国武豊喜, 岩本正和, 金子克美, 下村正嗣他編, ナノマテリアルハンドブック, NTS 出版 (2005)
 16. 岩本正和, 規則性ナノ空間の特性を活かした新しい触媒反応, 有機合成化学協会誌, 62, 411-416 (2004).
 17. 岩本正和, エチレンをプロピレに変える Ni-MCM-41 触媒, ペトロテック, 27, 628-633 (2004).
 18. 岩本正和, 新時代の多孔性材料とその応用, シーエムシー出版, 152-160 (2004)
 19. 岩本正和, 世界をリードする環境触媒技術とナノテクノロジー, 環境ビジネス, 15, 12-13 (2003).
 20. 岩本正和, ナノ空間が化学工業に新風, 日経先端技術, 45, 17-20 (2003).
 21. 八尋秀典, 岩本正和, Cu-ZSM-5 と一酸化窒素の直接分解反応, 触媒, 45, 26-31 (2003).
 22. 岩本正和, 規則性超微空間触媒を用いる夢の反応, 先端化学シリーズ, 丸善, 1, 163-170 (2003).

(3)学会発表 (国際学会及び主要な国内学会発表) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

招待講演 (国内会議 2 件、国際会議 3 件)

国内

1. 岩本正和, シリカナノ空間触媒によるバイオエタノールの選択的低級オレフィン化, 茨城県つくば市 つくば国際会議場, 平成 19 年 12 月 14 日
2. 岩本正和, ナノ空間触媒の不思議と魅力, 第 101 回触媒討論会, 東京都江戸川区 タワーホール船堀, 平成 20 年 3 月 28 日

国際

1. Masakazu Iwamoto, Metathesis of Olefins on Nickel Ion-Loaded Mesoporous Silica, 2nd Inter. Sym. Adv. Micro- and Mesoporous Mater., Bulgaria Varna Hotel Chernomorec, 平成 19 年 9 月 8 日
2. Masakazu Iwamoto, Conversion of bioethanol to lower olefins on mesoporous silica catalysts, A3 Foresight Program on Mesoporous Materials, 東京都新宿区 早稲田大学, 平成 19 年 12 月 18 日
3. Masakazu Iwamoto, Conversion of Bioethanol to Lower Olefins on Nickel Ion-loaded

Mesoporous Silica Catalysts, Rideal Conference, UK Cambridge Robinson College, 平成
20 年 3 月 19 日

口頭発表 (国内会議 100 件、国際会議 10 件)

国内

1. 石谷暖郎、内藤弘祥、岩本正和, 規則性メゾ多孔体上での Friedel-Crafts 反応およびアルドール反応, 石油学会第 52 回研究発表会、D14、東京都千代田区 学術総合センター, 平成 15 年 5 月 21 日
2. 石谷暖郎、内藤弘祥、岩本正和, シリカメゾ多孔体を触媒とする炭素-炭素結合生成反応, 第 92 回触媒討論会、2B04、徳島市 徳島県郷土文化会館, 平成 15 年 9 月 19 日
3. 大橋成一郎、石谷暖郎、岩本正和, 金属イオンを用いない不均一系接触酸化反応の開発, 第 92 回触媒討論会、3D04、徳島市 徳島大学, 平成 15 年 9 月 20 日, 松本秋弥、堀内英輔、石谷暖郎、岩本正和
4. バナジウムイオン担持メゾ多孔体によるスチレン類縁体の部分酸化, 第 92 回触媒討論会、3F28、徳島市 徳島大学, 平成 15 年 9 月 20 日
5. 岡田春樹、田中敏弘、岩本正和, シリカ系メゾ多孔体中でのジアリールエテンの光応答挙動, 日本化学会第 84 春季年会、1H3-47、兵庫県西宮市 関西学院大学, 平成 16 年 3 月 26 日
6. 田中敏弘、岩本正和, アゾベンゼン修飾による光応答性メゾ多孔体の構築, 日本化学会第 84 春季年会、1H3-48、兵庫県西宮市 関西学院大学, 平成 16 年 3 月 26 日
7. 石谷暖郎、内藤弘祥、岩本正和, シリカメゾ多孔体上での Friedel-Crafts アシル化反応における溶媒効果, 日本化学会第 84 春季年会、2F2-06、兵庫県西宮市 関西学院大学, 平成 16 年 3 月 27 日
8. 内藤弘祥、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体を触媒とするカルボン酸と芳香族化合物との Friedel-Crafts アシル化反応, 日本化学会第 84 春季年会、2F2-07、兵庫県西宮市 関西学院大学, 平成 16 年 3 月 27 日
9. 大橋成一郎、石谷暖郎、岩本正和, Ti 担持メゾ多孔体上でのスルフィド類の触媒的不斉酸化, 日本化学会第 84 春季年会、3K1-04、兵庫県西宮市 関西学院大学, 平成 16 年 3 月 28 日
10. 松本秋弥、堀内英輔、石谷暖郎、岩本正和, 2-メチルインデンの過酸化水素酸化に対する MCM-41 の特異な共存効果, 日本化学会第 84 春季年会、3L1-49、兵庫県西宮市 関西学院大学, 平成 16 年 3 月 28 日
11. 沖田充司、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体上での強酸点の構築とその触媒作用, 日本化学会第 84 春季年会、3L1-50、兵庫県西宮市 関西学院大学, 平成 16 年 3 月 28 日
12. 石谷暖郎、大橋成一郎、寺口宏恵、岩本正和, チタンイオン担持メゾ多孔体上でのスルフィド類の不均酸化, 第 93 回触媒討論会、1A04、豊中市 大阪大学, 平成 16 年 3 月 30 日
13. 石谷暖郎、内藤弘祥、沖田充司、岩本正和, シリカメゾ多孔体は超強酸かー Friedel-Crafts 反応に対する触媒活性, 第 94 回触媒討論会、2B10、宮城県仙台市 東北大学, 平成 16 年 9 月 28 日
14. 村田宏朗、石谷暖郎、岩本正和, フェニル基の錯形成能を利用した Cr 錯体修飾型 MCM-41 の調製, 第 94 回触媒討論会、3J02、宮城県仙台市 東北大学, 平成 16 年 9 月 29 日
15. 田中敏弘、岡田春樹、岩本正和, シリカメゾ多孔体の有機被覆による光応答機能の導入, 第 53 回高分子討論会、2J14、札幌 北海道大学札幌キャンパス, 平成 16 年 9 月 16 日

16. 田中敏弘、岡田春樹、岩本正和、メゾ多孔体の細孔内に捕捉された分子の運動性制御, 第 94 回触媒討論会、2A14、仙台 東北大学川内キャンパス, 平成 16 年 9 月 28 日
17. 林文隆、石津賢一、山本孝、岩本正和、メゾポーラスシリコンオキシナイトライドの合成とそのキャラクタリゼーション, 第 94 回触媒討論会、3J03、仙台 東北大学川内キャンパス, 平成 16 年 9 月 29 日
18. 岡田春樹、田中敏弘、岩本正和、メゾ多孔体の細孔径によるジアリールエテンの光応答反応の制御, 第 48 回日本学術会議材料研究連合講演会、315、東京都港区 日本学術会議, 平成 16 年 10 月 20 日
19. 沖田充司、石谷暖郎、岩本正和、シリカ系メゾ多孔体を触媒とする Friedel-Crafts アルキル化反応, 第 48 回日本学術会議材料研究連合講演会、314、東京都港区 日本学術会議, 平成 16 年 10 月 20 日
20. 石谷暖郎、岩本正和、銅担持メゾ多孔体を用いるシクロプロパン化反応, 日本化学会第 85 春季年会、1C2-33、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 26 日
21. 村田宏朗、石谷暖郎、岩本正和、金属担持メゾ多孔体上でのジアゾエステルとアルデヒドの反応, 日本化学会第 85 春季年会、1C2-34、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 26 日
22. 岡田春樹、田中敏弘、岩本正和、MCM-41 細孔中のジアリールエテンの光応答に対する有機基の影響, 第 85 日本化学会春季年会、2H7-10、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 27 日
23. 田中敏弘、岩本正和、ナノ多孔体中に取り込まれたニトリル化合物の吸収帯の細孔径による変化, 第 85 日本化学会春季年会、2H7-11、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 27 日
24. 工藤晴子、石谷暖郎、岩本正和、シリカメゾ多孔体上での Diels-Alder 反応：担持金属による触媒作用, 日本化学会第 85 春季年会、4B4-01、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 29 日
25. 築地広幸、石谷暖郎、岩本正和、MCM - 41 の調製法による触媒特性の変化：Diels-Alder 反応を例として, 日本化学会第 85 春季年会、4B4-02、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 29 日
26. 大橋成一郎、石谷暖郎、岩本正和、金属担持メゾ多孔体上でのシリルエノールエーテルの触媒的アミノ化, 日本化学会第 85 春季年会、4B4-05、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 29 日
27. 沖田充司、石谷暖郎、岩本正和、シリカメゾ多孔体上での Friedel-Crafts アルキル化反応, 日本化学会第 85 春季年会、4B4-08、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 29 日
28. 門間裕史、松本秋弥、石谷暖郎、岩本正和、メゾ多孔体を利用したエポキシドの cis-選択的開環反応, 日本化学会第 85 春季年会、4B4-09、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 29 日
29. 池田勝洋、芦沢裕基、小杉佳嗣、山本孝、岩本正和、Ni-MCM-41 上でのエチレン転換反応における焼成温度と細孔径の効果, 日本化学会第 85 春季年会、4B415、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 29 日
30. 葉石輝樹、山本孝、岩本正和、MCM-41 上でのメタノールによる環状オレフィンのアルキル化反応, 日本化学会第 85 春季年会、4B416、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 29 日
31. 堀俊介、高田仁、山本孝、岩本正和、酸素酸アニオン交換法による Mo-Zr および W-Zr 複合酸化物多孔体の調製, 日本化学会第 85 春季年会、4B434、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3 月 29 日
32. 神野智之、高橋学、出口隆、岩本正和、Pt、Pd コロイドを触媒とする過酸化水素の直接合成, 日本化学会第 85 春季年会、4B539、横浜市 神奈川大学, 平成 17 年 3

- 月 29 日
33. 山本孝、池田勝洋、芦沢裕基、小杉佳嗣、岩本正和、エチレンからプロピレンへの転換反応に対する Ni-MCM-41 の焼成温度の影響, 第 49 回日本学術会議材料研究連合講演会、436、京都 京大会館, 平成 17 年 9 月 16 日
 34. 田中敏弘、岩本正和、アゾベンゼン修飾による細孔径可変メゾ多孔体の調製, 第 49 回日本学術会議材料研究連合講演会、437、京都 京大会館, 平成 17 年 9 月 16 日
 35. 石谷暖郎、沖田充司、岩本正和、シリカメゾ多孔体を触媒とする Friedel-Crafts アルキル化反応—添加剤による酸強度の調整, 第 94 回触媒討論会、2A12、熊本市 テトリアくまもと, 平成 17 年 9 月 21 日
 36. 門間裕史、石谷暖郎、岩本正和、シリカメゾ多孔体によるフェニルシクロヘキセンオキシド誘導体のシス選択的開環反応, 第 96 回触媒討論会、3J20、熊本市 熊本大学, 平成 17 年 9 月 22 日
 37. 葉石輝樹、山本孝、岩本正和、MCM-41 上でのメタノールによるトルエンの気相アルキル化, 第 96 回触媒討論会 A、3J19、熊本市 熊本大学, 平成 17 年 9 月 22 日
 38. 築地広幸、石谷暖郎、岩本正和、シリカメゾ多孔体の構造規則性が Diels-Alder 反応活性に与える影響, 第 96 回触媒討論会、3J21、熊本市 熊本大学, 平成 17 年 9 月 22 日
 39. 池田勝洋、芦沢裕基、小杉佳嗣、山本 孝、岩本正和、種々の条件で調製した Ni-MCM-41 の触媒活性とキャラクタリゼーション, 第 35 回石油・石油化学討論会、2D17、岩手県盛岡市 マリオス, 平成 17 年 10 月 28 日
 40. 三村泰之、石谷暖郎、岩本正和、メゾポーラスシリカの合成および酸触媒活性に対する界面活性剤種の影響, 第 21 回ゼオライト研究発表会、B17、愛知県豊橋市 豊橋商工会議所, 平成 17 年 11 月 21 日
 41. 石谷暖郎、岩本正和、銅担持シリカメゾ多孔体上でのシクロプロパン化反応, 第 21 回ゼオライト研究発表会、B23、愛知県豊橋市 豊橋商工会議所, 平成 17 年 11 月 22 日
 42. 村田宏朗、石谷暖郎、岩本正和、MCM-41 上での三成分縮合反応によるジヒドロピリミジノン化合物の合成, 第 21 回ゼオライト研究発表会、B25、愛知県豊橋市 豊橋商工会議所, 平成 17 年 11 月 22 日
 43. 岡田春樹、田中敏弘、岩本正和、シリカナノ空間の細孔径と光異性化反応を結びつける, 第 1 回ナノ空間触媒フォーラム、東京 東京大学駒場キャンパス, 平成 17 年 11 月 30 日
 44. 門間裕史、松本秋弥、堀内英輔、石谷暖郎、岩本正和、シリカメゾ多孔体上でのスチレンおよびフェニルシクロヘキセンオキシド誘導体の選択的シスジヒドロキシル化, 第 1 回ナノ空間触媒フォーラム、東京 東京大学駒場キャンパス, 平成 17 年 11 月 30 日
 45. 石谷暖郎、岩本正和、銅担持シリカメゾ多孔体を用いる不均一系不斉シクロプロパン化反応, 日本化学会第 86 春季年会、1H4-18、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 27 日
 46. 村田宏朗、石谷暖郎、岩本正和、MCM-41 上での四成分縮合反応によるジヒドロピリミジノン化合物の合成, 日本化学会第 86 春季年会、1H5-04、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 27 日
 47. 門間裕史、石谷暖郎、岩本正和、シリカメゾ多孔体を触媒とするエポキシドの cis-選択的開環反応, 日本化学会第 86 春季年会、1H5-05、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 27 日
 48. 神野 智之、出口 隆、山本 孝、岩本 正和、種々の金属を添加した Pd コロイド上での過酸化水素の直接合成, 日本化学会第 86 春季年会、2D1-47、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 28 日
 49. 武永裕、田中敏弘、岩本正和、シリカメゾ多孔体中への有機固体分子の拡散, 日本

- 化学会第 86 春季年会、2D4-32、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 28 日
50. 築地広幸、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体の構造規則性が Diels-Alder 反応の収率、選択性に与える影響, 日本化学会第 86 春季年会、2D4-33、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 28 日
51. 工藤晴子、石谷暖郎、岩本正和, 金属担持によるシリカメゾ多孔体上の酸触媒特性の向上, 日本化学会第 86 春季年会、2D4-38、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 28 日
52. 齋藤 知佳、山本 孝、岩本 正和, NO の C_2H_4 -SCR 反応に対する白金担持シリカメゾ多孔体の触媒活性, 日本化学会第 86 春季年会、2D4-39、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 28 日
53. 荻野宏美、田中敏弘、岩本正和, シリカメゾ多孔体中に固定化されたアゾベンゼンの光異性化挙動, 日本化学会第 86 春季年会、2L1-37、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 28 日
54. 池田 勝洋、山本 孝、岩本 正和, エチレン転換活性およびメタセシス活性の Ni-MCM-41 のシリカ源／調製法による変化, 日本化学会第 86 春季年会、3D4-04、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 29 日
55. 葉石 輝樹、山本 孝、岩本 正和, バイオエタノールの有効利用-Ni-MCM-41 による低級オレフィンへの転換-, 日本化学会第 86 春季年会、3D4-08、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 29 日
56. 堀 俊介、高田 仁、山本 孝、岩本 正和, アニオン交換法による新規ジルコニウム系多孔体の合成, 日本化学会第 86 春季年会、3D4-15、千葉県船橋市 日本大学, 平成 18 年 3 月 29 日
57. 石谷暖郎、沖田充司、岩本正和, シリカメゾ多孔体を触媒とするアルキルベンゼン類の合成, 石油学会第 55 回研究発表会、B06、東京都江戸川区 タワーホール船堀, 平成 18 年 5 月 19 日
58. 村田宏朗、石谷暖郎、岩本正和, MCM-41 上での四成分縮合反応によるジヒドロピリミジノン化合物の合成, 石油学会第 55 回研究発表会、B07、東京都江戸川区 タワーホール船堀, 平成 18 年 5 月 19 日
59. 石谷暖郎、門間裕史、貝塚互輔、松本秋弥、岩本正和, シリカメゾ多孔体を触媒とするスチレン類の選択的シスジヒドロキシル化, 第 98 回触媒討論会、1B05、富山市 富山国際会議場, 平成 18 年 9 月 26 日
60. 村田宏朗、石谷暖郎、岩本正和, MCM-41 を触媒とする四成分縮合反応-多置換ジヒドロピリミジノン化合物の高効率合成-, 第 98 回触媒討論会、2B04、富山市 富山国際会議場, 平成 18 年 9 月 27 日
61. 齋藤知佳、山本孝、岩本正和, シリカメゾ多孔体担持白金触媒による NO の選択還元, 第 98 回触媒討論会、3I04、富山市 富山大学, 平成 18 年 9 月 28 日
62. 笠井幸司、葉石輝樹、山本孝、岩本正和, Ni 担持メゾポーラスシリカによるバイオエタノールの選択的低級オレフィン化, 第 98 回触媒討論会、3I05、富山市 富山大学, 平成 18 年 9 月 28 日
63. 石谷暖郎、大澤弘明、岩本正和, シリカメゾ多孔体担持銅触媒を用いる不均一系不斉シクロプロパン化反応, 第 98 回触媒討論会、3I31、富山市 富山大学, 平成 18 年 9 月 28 日
64. 田中敏弘、岩本正和, 規則性シリカ多孔体中での光機能化学の開拓, アライアンス分科会仙台シンポジウム-新機能ナノエレクトロニクス-, 仙台 東北大学片平キャンパス, 平成 18 年 10 月 26 日
65. 荻野宏美、田中敏弘、岩本正和, アゾベンゼン修飾によるメゾ多孔体の細孔径の可変性, 第 22 回ゼオライト研究発表会、C19、東京 タワーホール船堀, 平成 18 年 12 月 6 日
66. 田中敏弘、岩本正和, アニオン交換法によるフェニル基導入ジルコニウム系多孔体

- の合成, 日本化学会第 87 春季年会、1M2-29、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 25 日
67. 山村泰三、石谷暖郎、岩本正和, α -メチルスチレンの選択的二量化反応に対するシリカメゾ多孔体の触媒特性, 日本化学会第 87 春季年会、1M2-42、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 25 日
68. 村田宏朗、石谷暖郎、岩本正和, Al 担持シリカメゾ多孔体上での Biginelli 反応に対する構造規則性の効果, 日本化学会第 87 春季年会、1M2-43、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 25 日
69. 貝塚互輔、門間裕史、松本秋弥、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体を触媒とするエポキシドの立体選択的開環反応, 日本化学会第 87 春季年会、1M2-44、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 25 日
70. 笠井幸司、葉石輝樹、岩本正和, Ni-MCM-41 を触媒とするアルコールの高選択的脱水反応, 日本化学会第 87 春季年会、1M2-48、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 25 日
71. 林文隆、岩本正和, シリカメゾ多孔体およびオキシナイトライド多孔体を担体とするアンモニアの接触合成, 日本化学会第 87 春季年会、1M2-49、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 25 日
72. 川村幸、岩本正和, Ni-MCM-41 を触媒とする低級オレフィンの相互転換反応, 日本化学会第 87 春季年会、1M2-50、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 25 日
73. 大澤弘明、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体担持銅触媒上での不均一系不斉シクロプロパン化反応. 配位子構造によるジアステレオ、エナンチオ選択性の変化, 日本化学会第 87 春季年会、2C8-12、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 26 日
74. 石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体担持金属触媒による不均一系インドール C-H 結合挿入反応, 日本化学会第 87 春季年会、2C8-13、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 26 日
75. 萩原小百合、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体担持銅触媒上でのエポキシド、フラン誘導体合成, 日本化学会第 87 春季年会、2C8-14、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 26 日
76. 新井啓司、田中敏弘、岩本正和, ポルフィリン-テトラキスアゾベンゼン誘導体のシリカメゾ多孔体中での光異性化反応, 日本化学会第 87 春季年会、2G7-49、大阪府吹田市 関西大学, 平成 19 年 3 月 26 日
77. 岩本正和、田中敏弘, ジルコニウム系複合多孔体の調製, ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス発足記念シンポジウム、東京都千代田区 学士会館, 平成 19 年 6 月 6 日
78. 石谷暖郎、大澤弘明、岩本正和, 銅担持シリカメゾ多孔体触媒による不均一系不斉シクロプロパン化反応, 第 100 回触媒討論会、1A17、北海道札幌市 札幌コンベンションセンター, 平成 19 年 9 月 17 日
79. 村田宏朗、石谷暖郎、岩本正和, Al 担持 MCM-41 触媒の調製条件によるメゾ細孔表面積と Biginelli 反応活性の変化, 第 100 回触媒討論会、4I25、北海道札幌市 北海道大学, 平成 19 年 9 月 20 日
80. 林文隆、岩本正和, シリカ多孔体およびオキシナイトライド多孔体を担体とするアンモニアの接触合成, 第 100 回触媒討論会、4D09、北海道札幌市 北海道大学, 平成 19 年 9 月 20 日
81. 大澤弘明、石谷暖郎、岩本正和, 銅担持シリカメゾ多孔体上での α -置換型ジアゾエステルとスチレン誘導体との不斉シクロプロパン化反応, 第 100 回触媒討論会、4D11、北海道札幌市 北海道大学, 平成 19 年 9 月 20 日
82. 川村幸、池田勝洋、山本孝、岩本正和, Ni-MCM-41 の調整法と触媒活性・Ni 担持状態の関連, 第 100 回触媒討論会、4D07、北海道札幌市 北海道大学, 平成 19 年 9 月 20 日

83. 貝塚互輔、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体上でのエポキシドの立体選択的開環反応, 第 100 回触媒討論会、4D12、北海道札幌市 北海道大学, 平成 19 年 9 月 20 日
84. 笠井幸司、葉石輝樹、岩本正和, メソポーラスシリカ触媒による C_2 - C_4 アルコールの高選択的低級オレフィン化, 第 100 回触媒討論会、4D08、北海道札幌市 北海道大学, 平成 19 年 9 月 20 日
85. 岩本正和、田中敏弘, 機能性ナノ空間材料の調製と応用, アライアンス分科会大阪シンポジウムー新機能ナノエレクトロニクスー、大阪府茨木市 大阪大学, 平成 19 年 9 月 27 日
86. 萩原小百合、石谷暖郎、岩本正和, 三成分縮合反応を利用する銅担持シリカメゾ多孔体上での環状エーテル合成, 第 37 回石油・石油化学討論会、2F03、北海道札幌市 札幌コンベンションセンター, 平成 19 年 10 月 26 日
87. 山村泰三、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体の表面水酸基と α -メチルスチレンの二量化活性の関連, 第 37 回石油・石油化学討論会、2F16、北海道札幌市 札幌コンベンションセンター, 平成 19 年 10 月 26 日
88. 古賀晃子、齋藤知佳、岩本正和, 貴金属担持シリカメゾ多孔体触媒による NO の選択還元, 第 37 回石油・石油化学討論会、1B10、北海道札幌市 札幌コンベンションセンター, 平成 19 年 10 月 25 日
89. 田中敏弘、徐寅碩、岩本正和, 壁イオン交換法によるフェニル基導入ジルコニウム系複合多孔体の調製, 第 23 回ゼオライト研究発表会、A29、秋田県秋田市 秋田キャッスルホテル, 平成 19 年 11 月 8 日
90. 林文隆、石津賢一、岩本正和, メソポーラスシリコンオキシナイトライドー調整法、構造解析、反応・安定性, 第 23 回ゼオライト研究発表会、A30 総、秋田県秋田市 秋田キャッスルホテル, 平成 19 年 11 月 8 日
91. 田中敏弘、徐寅碩、岩本正和, 壁イオン交換法によるフェニル基導入リン酸ジルコニウム多孔体の調製とその構造評価, 日本化学会第 88 春季年会、2L4-50、東京都豊島区 立教大学, 平成 20 年 3 月 27 日
92. 村田宏朗、石谷暖郎、岩本正和, A1 担持シリカメゾ多孔体調製時の pH が細孔構造、A1 配位構造におよぼす効果, 日本化学会第 88 春季年会、2L4-48、東京都豊島区 立教大学, 平成 20 年 3 月 27 日
93. 大澤弘明、石谷暖郎、岩本正和, 銅担持シリカメゾ多孔体上での α -置換型ジアゾエステルとスチレン誘導体との不斉シクロプロパン化反応, 日本化学会第 88 春季年会、2J1-10、東京都豊島区 立教大学, 平成 20 年 3 月 27 日
94. 貝塚互輔、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体を触媒とする 1-アリアルシクロヘキセンオキシドへの cis-選択的インドール付加反応, 日本化学会第 88 春季年会、2J1-11、東京都豊島区 立教大学, 平成 20 年 3 月 27 日
95. 川村幸、岩本正和, 金属担持メゾ多孔体を触媒とするエタノールの水蒸気改質, 日本化学会第 88 春季年会、2L4-33、東京都豊島区 立教大学, 平成 20 年 3 月 27 日
96. 萩原小百合、石谷暖郎、岩本正和, 銅担持シリカメゾ多孔体触媒による三成分縮合型フラン誘導体合成, 日本化学会第 88 春季年会、2K3-39、東京都豊島区 立教大学, 平成 20 年 3 月 27 日
97. 山村泰三、石谷暖郎、岩本正和, シリカメゾ多孔体の高温処理による α -メチルスチレン二量化活性と表面水酸基量の変化, 日本化学会第 88 春季年会、2L4-36、東京都豊島区 立教大学, 平成 20 年 3 月 27 日
98. 笠井幸司、葉石輝樹、岩本正和, シリカメゾ多孔体触媒によるエタノールの低級オレフィン化反応に対する空間速度の影響, 日本化学会第 88 春季年会、2L4-34、東京都豊島区 立教大学, 平成 20 年 3 月 27 日
99. 古賀晃子、齋藤知佳、岩本正和, 貴金属担持メゾ多孔体触媒による NO の選択還元, 日本化学会第 88 春季年会、2L4-32、東京都豊島区 立教大学, 平成 20 年 3 月 27 日

日

100. 徐寅碩、高田仁、田中敏弘、岩本正和、種々の酸素酸アニオンに対するチタン酸－硫酸根－界面活性剤メゾ構造体の壁イオン交換挙動、日本化学会第 88 春季年会、2L4-51、東京都豊島区 立教大学、平成 20 年 3 月 27 日

国際

1. 岩本正和、小杉佳嗣、芦沢裕基、山本孝、Conversion of Ethene to Propene through Dimerization and Subsequent Metathesis on Nickel Ion-Loaded Mesoporous Silica Catalyst, 第 13 回国際触媒会議、フランス パリ Palais des Congrès de Paris, 平成 16 年 7 月
2. 石谷暖郎、内藤弘祥、岩本正和、Friedel-Crafts acylation with carboxylic acids on mesoporous silica materials, 13 回日台触媒会議、甲府市 山梨大学、平成 16 年 10 月 20 日
3. 石谷暖郎、内藤弘祥、沖田充司、岩本正和、Friedel-Crafts reactions over mesoporous silica materials, The 10th Japan-Korea Symposium on Catalysis、OL-24、島根県松江市 島根県民会館、平成 17 年 5 月 12 日
4. 村田宏朗、岩本正和、石谷暖郎、Dihydropyrimidinone syntheses through multi-component condensation on mesoporous silica catalysts, Fifth Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (TOCAT 5)、O-B33、東京都江戸川区 タワーホール船堀、平成 18 年 7 月 27 日
5. 岩本正和、石谷暖郎、門間裕史、松本秋弥、Cis-selective dihydroxylation of 1-phenylcyclohexene oxide derivatives over mesoporous silica catalyst, Fifth Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (TOCAT 5)、O-B34、東京都江戸川区 タワーホール船堀、平成 18 年 7 月 27 日
6. 石谷暖郎、大橋成一郎、寺口宏恵、岩本正和、Asymmetric oxidation of sulfide over Ti-MCM-41 in the presence of tartaric acid derivatives, International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC 2006)、OC305、鳥取県米子市 米子コンベンションセンター、平成 18 年 8 月 2 日
7. 石谷暖郎、岩本正和、Heterogeneous enantioselective cyclopropanation reactions on copper-planted mesoporous silica catalyst, The 232nd ACS National Meeting、COLL 426、San Francisco、平成 18 年 9 月 12 日
8. 石谷暖郎、築地広幸、山村泰三、岩本正和、Dependence of catalytic activity of mesoporous silica for Diels-Alder reaction on the Al content and the array of mesopores, 4th Asia Pacific Congress on Catalysis (APCAT 4)、A5-O20、Singapore Nanyang Executive Centre、平成 18 年 12 月 7 日
9. 石谷暖郎、大橋成一郎、寺口宏恵、岩本正和、Asymmetric oxidation of sulfide over Ti-MCM-41 in the presence of tartaric acid derivatives, The 11th Korea-Japan Symposium on Catalysis、GO-36、Seoul Yonsei University、平成 19 年 5 月 23 日
10. 笠井幸司、葉石輝樹、岩本正和、Highly Selective Conversion of Ethanol into Lower Olefin over Nickel Ion-Loaded Mesoporous Silica MCM-41, Europacat VIII、012-8、Turku, Finland Turku Fair and Congress Center、平成 19 年 8 月 31 日

ポスター発表 (国内会議 0 件、国際会議 26 件)

国際

1. H. Ishitani, S. Ohashi, H. Teraguchi, M. Iwamoto, Asymmetric Oxidation of Sulfide over Ti-MCM-41 in the Presence of Tartaric Acid Derivatives, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, P2-26, 札幌市、平成 17 年 9 月 29 日
2. A. Okita, H. Ishitani, M. Iwamoto, Friedel-Crafts Alkylation on Mesoporous Silica

- Catalysts, 2005 環太平洋国際化学会議, ENVR-0469、ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 18 日
3. H. Murata, H. Ishitani, M. Iwamoto, Synthesis of α -Ketoesters from Aldehydes and Diazoesters on Mesoporous Silica Catalyst and Biginelli Reaction, 2005 環太平洋国際化学会議, ENVR-0478, ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 18 日
 4. H. Ishitani, S. Ohashi, H. Teraguchi, M. Iwamoto, Heterogeneous Asymmetric Oxidation of Sulfide on Ti Ion-planted Mesoporous Silica in the presence of Chiral Ligands, PACIFICHEM 2005 (2005 環太平洋国際化学会議), MATL-1409, ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 19 日
 5. H. Kudou, H. Ishitani, M. Iwamoto, Stereoselective Diels-Alder Reactions of Bidentate Substrates over Ti Ion-planted Mesoporous Silica Catalysts, 2005 環太平洋国際化学会議, 0478, ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 19 日
 6. Tomoyuki Jinno, Manabu Takahashi, Takashi Deguchi, Takashi Yamamoto and Masakazu Iwamoto, Partial oxidation of molecular hydrogen into hydrogen peroxide over noble metal colloid catalysts, 2005 環太平洋国際化学会議、ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 18 日
 7. Shunsuke Hori, Hitoshi Takada, Takashi Yamamoto and Masakazu Iwamoto, Synthesis of highly ordered porous zirconium-tungsten mixed oxides by anion exchange method, 2005 環太平洋国際化学会議、ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 18 日
 8. Katsuhiko Ikeda, Hiroki Ashizawa, Yoshitsugu Kosugi, Takashi Yamamoto and Masakazu Iwamoto, One-path conversion of ethene to propene over Ni-ion loaded mesoporous silica catalysts, 2005 環太平洋国際化学会議、ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 19 日
 9. Fumitaka Hayashi, Ken-ichi Ishizu, Takashi Yamamoto and Masakazu Iwamoto, Synthesis of ordered mesoporous silicon oxynitrides with high nitrogen content, 2005 環太平洋国際化学会議、ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 19 日
 10. Toshihiro Tanaka and Masakazu Iwamoto, Chemical Resources Laboratory, Tokyo Institute of Technology, Photocontrol of Pore Size of Mesoporous Silica with the Isomerization of Planted Azobenzene, 2005 環太平洋国際化学会議、ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 18 日
 11. Haruki Okada, Nozomi Nakajima, Toshihiro Tanaka, and Masakazu Iwamoto, Chemical Resources Laboratory, Tokyo Institute of Technology, Remarkable Improvement of Photocyclization Rate Constant of Diarylethene with Pore Diameter of Mesoporous Materials, 2005 環太平洋国際化学会議、ホノルル、米国、平成 17 年 12 月 19 日
 12. Hiroaki Murata, Haruro Ishitani, Masakazu Iwamoto, Tandem four-component condensations for the convenient syntheses of dihydropyrimidinone derivatives on mesoporous silica catalysts, 232nd ACS National Meeting, COLL-309, San Francisco, 平成 18 年 9 月 11 日
 13. Kosuke Kaizuka, Hiroshi Kadoma, Haruro Ishitani, Masakazu Iwamoto, Cis-selective ring-opening reactions of 1-arylcyclohexene oxides on mesoporous silica catalyst, 232nd ACS National Meeting, COLL-237, San Francisco, 平成 18 年 9 月 11 日
 14. Koji Kasai, Teruki Haishi, Takashi Yamamoto, Masakazu Iwamoto, Highly selective conversion of bioethanol into lower olefins over Ni-ion loaded mesoporous silica catalysts, 232nd ACS National Meeting, PETR-051, San Francisco, 平成 18 年 9 月 11 日
 15. Yu Takenaga, Toshihiro Tanaka, Masakazu Iwamoto, Voluntary diffusion of solid-state organic molecules into mesopores of silica MCM-41, 232nd ACS National Meeting, COLL-312, San Francisco, 平成 18 年 9 月 11 日
 16. Toshihiro Tanaka, Haruki Okada, Masakazu Iwamoto, Remarkable improvement of photocyclization efficiency of diarylethene by adjusting the pore size of mesoporous

- material, 232nd ACS National Meeting, COLL-289, San Francisco, 平成 18 年 9 月 11 日
17. Hiromi Ogino, Toshihiro Tanaka, Masakazu Iwamoto, Change in pore size of mesoporous silica with the isomerization of plated azobenzene, 232nd ACS National Meeting, COLL-234, San Francisco, 平成 18 年 9 月 11 日
 18. Fumitaka Hayashi, Kenichi Ishizu, Takashi Yamamoto, Masakazu Iwamoto, Preparation of highly nitrated mesoporous silica materials, 4th Asia Pacific Congress on Catalysis, A1-P18, Singapore, 平成 18 年 12 月 6 日
 19. Chika Saito, Takashi Yamamoto, Masakazu Iwamoto, Selective catalytic reduction of NO with ethene over platinum loaded mesoporous silica, 4th Asia Pacific Congress on Catalysis, A7-P12, Singapore, 平成 18 年 12 月 7 日
 20. Kosuke Kaizuka, Hiroshi Kadoma, Haruro Ishitani, Masakazu Iwamoto, Cis-selective ring-opening reactions of 1-phenylcyclohexene oxide derivatives over mesoporous silica catalyst, The 11th Korea-Japan Symposium on Catalysis, Seoul Yonsei University, 平成 19 年 5 月 22 日
 21. Haruro Ishitani, Kosuke Kaizuka, Hiroshi Kadoma, Masakazu Iwamoto, Cis-selective ring-opening reactions of 1-aryl cyclohexene oxides over mesoporous silica catalyst, Europacat VIII, Turku, Finland Turku Fair and Congress Center, 平成 19 年 8 月 27 日
 22. Hiroaki Murata, Haruro Ishitani, Masakazu Iwamoto, Tandem four-component dihydropyrimidinone synthesis on mesoporous silica catalysts, Europacat VIII, Turku, Finland Turku Fair and Congress Center, 平成 19 年 8 月 27 日
 23. Hiroaki Osawa, Haruro Ishitani, Masakazu Iwamoto, Heterogeneous enantioselective cyclopropanation reaction on mesoporous silica-planted copper catalyst, Europacat VIII, Turku, Finland Turku Fair and Congress Center, 平成 19 年 8 月 27 日
 24. Keiji Arai, H. Ogino, T. Tanaka, M. Iwamoto, Photo-change in Pore Size of Mesoporous Silica Materials with the Isomerization of Planted Azobenzene, 2007 Materials Research Society Fall Meeting, Boston, USA Hynes Convention Center, 平成 19 年 11 月 29 日
 25. Yuki Kawamura, Katsuhiko Ikeda, Hiroki Ashizawa, Yoshitugu Kosugi, Takashi Yamamoto, Masakazu Iwamoto, Inter-conversions of Lower Olefins on Ni Ion-loaded Mesoporous Silica Catalyst, International Symposium on Catalysis and Fine Chemicals 2007, Singapore Nanyang Technological University, 平成 19 年 12 月 17 日
 26. Sayuri Hagiwara, Haruro Ishitani, Masakazu Iwamoto, Three-component condensation to form furan derivatives on Cu-MCM-41, International Symposium on Catalysis and Fine Chemicals 2007 Singapore Nanyang Technological University, 平成 19 年 12 月 17 日

(4)特許出願

(ア)国内出願 (7 件)

1. 岩本正和、笠井幸司、高橋収、オレフィンの製造方法、特願 2008-56573
2. 岩本正和、川村幸、龍門尚徳、水素製造触媒、水素製造方法、および、燃料電池システム、特願 2008-061202
3. 岩本正和、笠井幸司、高橋収、プロピレンの製造方法、特願 2007-060999
4. 岩本正和、川村幸、高橋収、オレフィンの異性化方法、特願 2007-061000
5. 岩本正和、笠井幸司、高橋収、オレフィンの製造方法、特願 2007-061001

6. 岩本正和、葉石輝樹、エタノールをプロピレンに転換する方法、特願 2 0 0 6 - 0 1 3 2 5 9
7. 岩本正和、山本孝、葉石輝樹、エタノールをプロピレンに転換する方法、特願 2 0 0 6 - 3 2 1 4 4 3

②海外出願 (1 件)

1. 岩本正和、山本孝、葉石輝樹、触媒およびそれを用いるオレフィンの製造方法、国際出願番号 P C T / J P 2 0 0 7 / 0 5 0 6 5 6

(5)受賞等

《受賞や新聞報道等について具体的に記載ください。》

①受賞

1. M. Iwamoto, 2006 Elsevier's Top Cited Article Award
2. 岩本正和、平成 19 年度文部科学大臣表彰科学技術賞
3. 石谷暖郎 平成 17 年度東工大挑戦的研究賞 「規則性ナノ空間物質の特性を活かした高立体選択的有機合成反応」
4. 石谷暖郎、平成 19 年度文部科学大臣表彰若手研究者賞

②新聞報道

1. 毎日新聞、平成 18 年 12 月 12 日、「生物化学コンビナート構想」
2. 日本経済産業新聞、平成 19 年 02 月 05 日、「環境保全に触媒や素材」
3. 日本経済新聞、平成 19 年 02 月 09 日、「プラスチック原料をエタノールから合成」
4. フジサンケイビジネスアイ、平成 19 年 2 月 27 日、「植物系プラ製造で CO₂ 削減」
5. 化学、平成 19 年 (62 巻) 4 月号、73 頁「プラスチック原料をエタノールから合成」
6. 環境ビジネス、平成 19 年 6 月号、「エタノールからプラスチック原料ー世界初の高収率・長寿命触媒ー」
7. NTS ニュース、平成 20 年 1 月号、「～イノベーションに至る道～」
8. 日本経済新聞、平成 20 年 1 月 1 日、「温暖化止める技術の芽」
9. 日本経済産業新聞、平成 20 年 2 月 26 日、「プロピレン エチレンから合成」

窪田 G

(1)原著論文発表 (国内誌 0 件、国際誌 9 件) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

1. Organic-inorganic hybrid catalysts based on ordered porous structures for Michael reaction, Y. Kubota, H. Ikeya, Y. Sugi, T. Yamada, and T. Tatsumi, *J. Mol. Catal., A: Chemical*, **249** (1-2), 181-190 (2006).
2. Synthesis of highly ordered mesoporous $p6_3/mmc$ and $p6mm$ phases by adding alcohols to the system for the SBA-1 synthesis, P. Srinivasu, S. Lim, Y. Kubota, T. Tatsumi, *Catal. Today*, **111** (3-4), 379-384 (2006).
3. Hydrothermal synthesis of metallosilicate SSZ-24 from metallosilicate beta as precursors, Y. Kubota, H. Maekawa, S. Miyata, T. Tatsumi, Y. Sugi, *Micropor. Mesopor. Mater.*, **101** (1-2), 115-126 (2007).
4. Hydrothermal synthesis of calcium and boron containing MFI-Type zeolites by using organic amine as structure directing agent, R. Kawase, A. Iida, Y. Kubota, K. Komura, Y. Sugi, K. Oyama, H. Itoh, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **46** (4), 1091-1098 (2007).
5. Nanostructural modification of organic-tethered MCM-22 catalyst and its catalytic performance, Y. Kubota, M. Yoshida, T. Tatsumi, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, **170**, 629-634 (2007).
6. Synthesis of chiral mesoporous silica by using chiral anionic surfactants, T. Yokoi, Y. Yamataka, Y. Ara, S. Sato, Y. Kubota, T. Tatsumi, *Micropor. Mesopor. Mater.*, **103** (1-3), 20-28 (2007).
7. Organic-inorganic hybrid catalysts based on ordered porous structures for carbon-carbon bond forming reactions, Y. Kubota, Y. Sugi, T. Tatsumi, *Catalysis Surveys from Asia*, **11**, 158-170 (2007).
8. Performance of organic-inorganic hybrid catalysts based on $Ia-3d$ mesoporous silica, Y. Kubota, C. Jin, T. Tatsumi, *Catal. Today*, **132**, 75-80 (2008).
9. A multi-dimensional microporous silicate that is isomorphous to zeolite MCM-68, Y. Koyama, T. Ikeda, T. Tatsumi, Y. Kubota, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **47**, 1042-1046 (2008). (Hot Paper)

(2)その他の著作物 (総説、書籍など)

1. ゼオライトの新合成法, 窪田好造, ナノマテリアルハンドブック, エヌ・ティー・エス (国武豊喜 監修) 2005.2.
2. (NMR (核磁気共鳴), 窪田好造, in 固体表面キャラクタリゼーションの実際, 講談社サイエンティフィク (田中庸裕・山下弘巳編), pp. 97-111 (2005).
3. 最近の大孔径高シリカゼオライト, 窪田好造, ゼオライト, **22**, 114-123 (2005).
4. 最近見直されているゼオライト——12 員環と 10 員環が交差した細孔構造, 窪田好造, ペトロテック, Vol. 28, pp. 870-872 (2005)
5. ゼオライト開発の現状, 窪田好造, 辰巳 敬, 真空, Vol. 49, No. 4, pp. 97-111 (2006).
6. 触媒・光触媒の科学入門, 講談社サイエンティフィク (山下弘巳, 田中庸裕, 三宅孝

典, 西山覚, 古南博, 八尋秀典, 窪田好浩, 玉置純 共著), 2006.11.01.

7. 固定化触媒のルネッサンス, 第 12 章 規則性多孔体触媒を用いる有機反応, シーエムシー (小林 修 監修), 2007. 7. 23 発行.
8. 左巻きおよび右巻きのシリカ細孔を創り分ける, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳敬, 未来材料, Vol. 7, No. 3, pp. 36-43 (2007)
9. 界面化学現象を利用する無機-有機ハイブリッド触媒の合成, 窪田好浩, 化学と教育, Vol. 55, No. 5, pp. 232-235 (2007)
10. 環境調和型新材料シリーズ 触媒材料, 各論 4.4, 日刊工業新聞社(日本セラミックス協会編), 2007. 10. 31 発行.

(3)学会発表 (国際学会及び主要な国内学会発表) 【JST が Acknowledge されているもののみ】

⑬ 招待講演 (国内会議 0 件、国際会議 0 件)

⑭ 口頭発表 (国内会議 44 件、国際会議 2 件)

1. 有機基修飾 MCM-22 型触媒の構造制御と高性能化, 窪田好浩, 吉田真理子, 佐伯昌美, 杉 義弘, 辰巳 敬, 石油学会第 48 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 54 回研究発表会) 講演要旨, p.122 (2005). 2005. 5. 16-17 C15
2. メソポーラスカーボンを鋳型としたチタノシリケートの合成とその触媒特性, 日出 真由美, 呉 鵬, 窪田 好浩, 辰巳 敬, 石油学会第 48 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 54 回研究発表会) 講演要旨, p.124 (2005) C17. 東京 2005. 5. 16-17 5/17
3. 石油ピッチを炭素源としたメソポーラスカーボンの合成, 金原規之, 窪田 好浩, 辰巳 敬, 石油学会第 48 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 54 回研究発表会) 講演要旨, p.69 (2005) B02. 東京 2005. 5. 16-17 5/17
4. 規則構造無機有機ハイブリッド触媒を用いた Michael 反応, 窪田好浩, 池谷久徳, 杉義弘, 辰巳 敬, 触媒, 47(6), 470-472 (2005). (熊本) 2005. 9. 20-23
5. メソポーラスカーボンを鋳型としたチタノシリケートの合成とその触媒性能, 日出 真由美, 呉 鵬, 窪田 好浩, 辰巳 敬, 第 96 回触媒討論会 討論会 A 予稿集, p.399 4 J 02 (熊本) 2005. 9. 20-23 9/23
6. アニオン性界面活性剤を用いて合成したメソポーラスシリカの塩基触媒活性, 山田登士, 横井俊之, 荒 陽一郎, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 96 回触媒討論会 討論会 A 予稿集, p.386 3 J 14 (熊本) 2005. 9. 20-23 9/22
7. 層間の広い MWW 型構造を持つ新規ゼオライト触媒の調製, 林 幹夫, 呉 鵬, 窪田 好浩, 辰巳 敬, 第 96 回触媒討論会 討論会 A 予稿集, p.378 3 J 04 (熊本) 2005. 9. 20-23 9/22
8. スルホ基固定化メソ多孔体の新規合成とエステル化反応への応用, 窪田好浩, 小野敦史, 村橋孝明, 旭 祐子, 杉 義弘, 辰巳 敬, 石油学会盛岡大会 (第 35 回石油・石油化学討論会) 講演要旨, p.60 (2005). 2C10 2005. 10. 27-28
9. Ga 含有ゼオライト触媒を用いた Baeyer-Villiger 酸化反応, 林 幹夫, 呉鵬, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.51-52 (2005). B5 総 (豊橋) 2005. 11. 21- 22
10. CHA 型ゼオライトの含有アルミ量の制御, 大沼良介, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.19 (2005). A13 (豊橋) 2005. 11. 21- 22
11. 有機基含有ゼオライト(ZOL)の窒化处理, 中西哲也, 土門祐輔, 稲垣怜史, 窪田好浩,

- 辰巳 敬, 第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.102 (2005). C11 (豊橋)
2005. 11. 21- 22
12. らせん状細孔を有するメソポーラスシリカ AMS の形態制御と応用, 山高雄介, 荒 陽一郎, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.36 (2005). A29 (豊橋) 2005. 11. 21- 22
 13. 大孔径 cubic Ia-3d メソポーラスシリカの合成・修飾と酸触媒としての応用, 金春実, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.70 (2005). B22 (豊橋) 2005. 11. 21- 22
 14. 大孔径ゼオライトを触媒とする多環芳香族炭化水素の形状選択的アルキル化, 前川宏吉, 玉田大史, 川越寛章, 小村賢一, 窪田好浩, 杉 義弘, 第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.49 (2005). B3 (豊橋) 2005. 11. 21- 22
 15. スルホ基固定化メソポーラスシリカによるアミノ酸類の t-Bu エステル化反応, 村橋孝明, 旭 祐子, 藤村一樹, 小村賢一, 窪田好浩, 杉 義弘, 第 21 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.68 (2005). B20 (豊橋) 2005. 11. 21- 22
 16. CIT-1 の合成と HC trap としての応用, 渡邊雄一, S.P. Elangovan, 小倉 賢, 窪田好浩, 横井俊之, 大久保達也, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-05, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
 17. 骨格内に有機基を含有する MOR 型ゼオライトの調製とその構造特性, 中西哲也・稲垣怜史, 窪田 好浩, 辰巳 敬,, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-10, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
 18. Ga-beta ゼオライトの Baeyer-Villiger 酸化反応に対する触媒特性, 林 幹夫, 稲垣怜史, 吳 鵬, 窪田 好浩, 辰巳 敬, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-11, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
 19. 多次元ゼオライト MCM-68 の合成とキャラクタリゼーション, 小山啓人, 辰巳 敬, 窪田 好浩, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D1-12, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 28 日)
 20. アニオン性界面活性剤を用いる新規メソポーラスシリカの合成, 荒 陽一郎, 山高雄介, 佐藤周作, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-28, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
 21. 新規アミノ酸系界面活性剤を用いるメソポーラスシリカの合成, 佐藤周作, 荒 陽一郎, 山高雄介, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-29, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
 22. メソポーラスカーボンの合成法と電気化学特性の相関, 金原規之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-36, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
 23. Cubic Ia-3d メソポーラスシリカの合成・修飾と酸触媒能, 金春実, 窪田好浩, 辰巳 敬, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-44, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
 24. 規則性メソ多孔体触媒の合成・修飾とエステル化反応への応用, 小野敦史, 窪田好浩, 辰巳 敬, 日本化学会第 86 春季年会(2006) 講演予稿集 CD-ROM, 2D4-45, 2006 年 3 月 27~30 日, 日大理工船橋キャンパス (3 月 29 日)
 25. メソポーラスカーボンの合成・修飾と電気化学特性, 金原規之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 石油学会第 49 回年会 (特別講演, 受賞講演, 第 55 回研究発表会) 講演要旨, p.73 (B08; May 18-19, 2006, Tokyo)
 26. Hydrothermal synthesis of metallosilicate SSZ-24 from metallosilicate beta as precursors, Y. Kubota, H. Maekawa, S. Miyata, T. Tatsumi, Y. Sugi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.63 (OB306; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 2)
 27. ベータ型メタロシリケートを前駆体とするメタロシリケート SSZ-24 の合成と触媒性能,

- 窪田好浩, 前川弘吉, 宮田俊介, 杉 義弘, 辰巳 敬, 第 98 回触媒討論会・討論会 A 予稿集, p.377 (4I05; September 26-29, 2006, Toyama)
28. 新規メソポーラスチタノシリケートの合成と触媒特性, 日出真由美, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 98 回触媒討論会・討論会 A 予稿集, p.381 (4I10; September 26-29, 2006, Toyama) (September 29)
 29. ゼオライト CIT-1 を用いた Baeyer-Villiger 酸化反応, 土屋雄作, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 98 回触媒討論会・討論会 A 予稿集, p.382 (4I11; September 26-29, 2006, Toyama) (September 29)
 30. アミノ酸系界面活性剤を用いるメソポーラスシリカの合成とその構造制御, 佐藤周作, 荒 陽一郎, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.14 (A9; December 5-6, 2006, Funabori) (December 5)
 31. アダマンタン誘導体を構造規定剤としたゼオライトの合成, 日出真由美, 大沼良介, 朱慶軍, 稲垣怜史, 横井俊之, 野村淳子, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.24 (A18; December 5-6, 2006, Funabori) (December 6)
 32. MCM-68 類似の新規マイクロポーラス結晶の合成とポスト処理, 小山啓人, 池田卓史, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.28 (A22; December 5-6, 2006, Funabori) (December 6)
 33. 白金担持規則性多孔体カーボンの調製, キャラクターゼーションおよび触媒特性, 金原規之, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.33 (B1; December 5-6, 2006, Funabori) (December 5)
 34. 大孔径 *Ia-3d* メソポーラスシリカの合成・修飾と触媒特性, 小野敦史, 金 春実, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.36 (B4; December 5-6, 2006, Funabori) (December 5)
 35. CIT-1 のポスト処理条件と触媒特性, 土屋雄作, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 22 回ゼオライト研究発表会講演予稿集, p.43 (B11; December 5-6, 2006, Funabori) (December 5)
 36. メソポーラスシリカを用いたクマリン誘導体の合成, 石丸 稔, 辰巳 敬, 窪田好浩, 日本化学会第 87 春季年会 (講演予稿集 CD-ROM, 1M2-47, March 25-28, 2007, 関西大学) (March 25)
 37. 多次元細孔チタノシリケート Ti-MCM-68 の合成と触媒性能, 小山啓人, 辰巳 敬, 窪田好浩, 日本化学会第 87 春季年会 (講演予稿集 CD-ROM, 3M2-43, March 25-28, 2007, 関西大学) (March 27)
 38. Performance of organic-inorganic hybrid catalysts based on *Ia-3d* mesoporous silica, Yoshihiro Kubota, Chunshi Jin, and Takashi Tatsumi, 11th Korea-Japan Symposium on Catalysis (GO-034; Abstracts, 11th Korea-Japan Symposium on Catalysis, p.61, May 22-23, 2007, Seoul) (May 23)
アスパラギン誘導体を用いた AMS の合成とキャラクターゼーション, 佐藤周作, 横井俊之, 辰巳敬, 窪田好浩, 第 100 回触媒討論会(3C 26, 第 100 回触媒討論会, 討論会 A 予稿集, p.862007 年 9 月 17~20 日, 北海道) (9 月 19 日)
 40. Al-MWW 層状前駆体の層間シリル化による新規大孔径ゼオライト触媒の調製, 稲垣怜史, 辻内翔, 林幹夫, 呉鵬, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 100 回触媒討論会 (B 講演) (1A 07 (注目発表), 触媒, **49**(6), 399-401 (2007), 2007 年 9 月 17~20 日, 札幌) (9 月 17 日)
 41. 塩基性アミノ酸添加法によるキラルシリカの合成と触媒としての応用, 横井俊之, 荒木裕子, 畑瀬國彦, 鈴木健太, 窪田好浩, 川崎常臣, 碓合 (そあい) 憲三, 辰巳敬, 第 100 回触媒討論会(4J17, 第 100 回触媒討論会討論会 A 予稿集, pp.437, 9/17-20, 2007, 北海道大学, 札幌) (9/20)
 42. 多孔性金属錯体の合成と触媒性能, 笠原 稔, 窪田好浩, 第 23 回ゼオライト研究発表会 (B1, 第 23 回ゼオライト研究発表会, 講演予稿集, p.43, 2007 年 11 月 7~8 日, 秋田) (11 月 7 日)
 43. 新規アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカの合成, 藤田恭平, 横井俊之, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 23 回ゼオライト研究発表会,(A10, 第 23 回ゼオライト研究発表会, 講演予稿集, p.18, 2007 年 11 月 7~8 日, 秋田) (11 月 7 日)

44. Ga 含量の異なる SSZ-13 ゼオライトの調製, 吉岡真人, 稲垣怜史, 日出真由美, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 23 回ゼオライト研究発表会(A18, 第 23 回ゼオライト研究発表会, 講演予稿集, p.26, 2007 年 11 月 7~8 日, 秋田) (11 月 8 日)
45. MSE 構造を有する新規ゼオライトの合成とポスト処理, 小山啓人, 池田卓史, 辰巳 敬, 窪田好浩, 第 23 回ゼオライト研究発表会(C19, 第 23 回ゼオライト研究発表会, 講演予稿集, p.100, 2007 年 11 月 7~8 日, 秋田) (11 月 8 日)
46. ゼオライト層状前駆体の層間への有機基修飾, 稲垣怜史, Fan Weibin, 横井俊之, 窪田好浩, 辰巳 敬, 第 23 回ゼオライト研究発表会(C22, 第 23 回ゼオライト研究発表会, 講演予稿集, p.102, 2007 年 11 月 7~8 日, 秋田) (11 月 8 日)

⑮ ポスター発表 (国内会議 5 件、国際会議 22 件)

1. Acceleration of base-catalyzed aldol reaction by ordered porous silicate, Y.Kubota, T. Yamada, S. Miyata, Y. Sugi, T.Tatsumi, 10th Japan-Korea Symposium on Catalysis, Extended Abstracts, P-107, pp. 327-328 (2005); Matsue, Japan, May 10-13, 2005. P-107
2. Synthesis of highly ordered mesoporous P63/mmc and p6mm phases by adding alcohols to the system for the SBA-1 synthesis, P. Srinivasu, S. Lim, Y.Kubota, T.Tatsumi, 10th Japan-Korea Symposium on Catalysis, Extended Abstracts, P-110, pp. 333-334 (2005); Matsue, Japan, May 10-13, 2005. P-110
3. メタロシリケート触媒を用いた Baeyer-Villiger 酸化反応, 林 幹夫, 呉 鵬, 窪田好浩, 辰巳敬, 石油学会第 48 回年会(第 54 回研究発表会)第 10 回 JPIJS ポスターセッション, 石油学会第 48 回年会(特別講演, 受賞講演, 第 54 回研究発表会)講演要旨集, p.7, 発表番号: P25
4. 規則性メソポーラスシリカを用いるアルドール型反応, 山田登士, 窪田好浩, 辰巳敬, 石油学会第 48 回年会(第 54 回研究発表会)第 10 回 JPIJS ポスターセッション, 石油学会第 48 回年会(特別講演, 受賞講演, 第 54 回研究発表会)講演要旨集, p.7, 発表番号: P26
5. Direct synthesis and characterization of WSBA-1 cubic mesoporous molecular sieves, P. Srinivasu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Book of Abstracts and Recent Research Report, 3rd FEZA Conference (3rd International Federation of European Zeolite Associations conference), RR-36, Prague, Czech Republic, August 23-26, 2005.
6. Synthesis and characterization of MoKIT-6: large pore, cubic mesoporous molecular sieves, P. Srinivasu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Program, Abstract, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, pp.130-131 (2005), September 25-30, 2005. Sapporo, Japan, P1-18
7. Baeyer-Villiger oxidation with hydrogen peroxide over BEA zeolite incorporating gallium into its framework, M. Hayashi, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Program, Abstract, 5th World Congress on Oxidation Catalysis, pp.436-437 (2005), September 25-30, 2005. Sapporo, Japan, P3-037
8. Synthesis, characterization and application of titanasilicate molecular sieves by using mesoporous carbon CMK-3 as a template, M. Hinode, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 544, Nano-structured Catalysts for Environmental Conservation (#55)-464, December 15-20, 2005, Honolulu (December 18, 2005).
9. Synergistic effect of base and mesoporous silicate on the aldol reaction, T. Yamada, Y. Kubota, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 544, Nano-structured Catalysts for Environmental Conservation (#55)-476, December 15-20, 2005, Honolulu (December 18, 2005).
10. Layer-expansion of Ga-MWW by silylation, M. Hayashi, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session 544, Nano-structured Catalysts for Environmental Conservation (#55)-502, December 15-20, 2005, Honolulu (December 18, 2005).

11. Organic-inorganic hybrid base catalysts for the Michael reaction, Y. Kubota, H. Ikeya, Y. Sugi, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session544, Nano-structured Catalysts for Environmental Conservation (#55)-516, December 15-20, 2005, Honolulu (December 18, 2005).
12. Synthesis of anionic-surfactant-templated mesoporous silica (AMS) by using co-structure directing agents (CSDA), Y. Ara, Y. Yamataka, T. Yokoi, Y. Kubota, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications (#164)-1393, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
13. Synthesis of mesoporous carbon by using petroleum pitches as carbon sources, N. Kimpara, Y. Kubota, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications (#164)-1415, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
14. Synthesis of mesoporous silica AMS with twisted mesopores, Y. Yamataka, Y. Ara, T. Yokoi, Y. Kubota, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications (#164)-1416, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
15. Synthesis of ITQ-21 and its stability, R. Ohnuma, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications (#164)-1419, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
16. Synthesis and characterization of organic-inorganic hybrid mordenite, T. Nakanishi, Y. Domon, K. Yamamoto, Y. Kubota, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session906, Nanoporous Materials: Synthesis and Applications(#164)-1420, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
17. Synthesis and characterization of MCM-68, Y. Kubota, T. Shibata, T. Ikeda, S. Suzuki, K. Komura, Y. Sugi, T. Tatsumi, 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2005), CD-ROM, Session907, Tuning Electronic Properties and Catalysis (#195)-1469, December 15-20, 2005, Honolulu (December 19, 2005).
18. Catalytic performance of amino-functionalized mesoporous silica synthesized by a novel synthesis route using an anionic surfactant, T. Yamada, T. Yokoi, T. Tatsumi, Y. Kubota, Abstracts, Fifth Tokyo Conference on Advanced catalytic Science and Technology (TOCAT5), p.255 (P-222; July 23-28, 2006, Tokyo) (July 25)
19. Asymmetric epoxidation catalyzed by (salen)Mn(III) complex loaded on MWW analogue, Y. Kubota, K. Hirose, P. Wu, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.63 (P1132; July 31-August 2, 2006, Yonago) (July 31)
20. A novel type of mesoporous titanasilicate replicated from mesoporous carbon, M. Hinode, T. Yokoi, P. Wu, Y. Kubota, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.107 (P2065; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)
21. Synthesis of novel mesoporous silica by using newly designed amino acid derivative as a surfactant, Y. Ara, Y. Yamataka, S. Sato, T. Yokoi, Y. Sakamoto, O. Terasaki, Y. Kubota, T. Tatsumi, Book of Abstracts (& CD), International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC2006), p.111 (P2088; July 31-August 2, 2006, Yonago) (August 1)
22. Synthesis, modification, and catalytic performance of cubic Ia-3d mesoporous silica, C. Jin, Y. Kubota, T. Tatsumi, Abstracts, 5th International Mesostructured Materials Symposium (5th IMMS), pp.904-905 (RRR P-404; August 5-7 2006, Shanghai)
23. Synthesis, modification and catalytic performance of mesoporous silica containing thiol and sulfuric acid moieties, Y. Kubota, C. Jin, A. Ono, T. Tatsumi, Abstract, Joint Meeting of the 1st Asian-Oceanian Conference on Green and Sustainable Chemistry and the 7th Annual Green and Sustainable Chemistry Symposium (GSC-AON2007), p.114 (A-52; March 6-9, 2007, Tokyo) (March 9)
24. Nanostructural modification of organic-tethered MCM-22 catalyst, Y. Kubota, M. Yoshida, T.

- Tatsumi, 15th International Zeolite Conference, (P-04-17, Book of Summaries, p.118, August 12-17, 2007, Beijing, China) (August 12)
25. 有機基修飾シリケートを用いた酸塩基触媒反応, 石丸稔, 窪田好浩, 第8回 GSC シンポジウム(A-16, グリーン・サステイナブル ケミストリー シンポジウム, p.54, 2007 年 3 月 6~7 日, 東京) (3 月 6 日)
 26. Ti-MCM-68 の合成と酸化触媒性能, 山田拓, 小山啓人, 稲垣怜史, 窪田好浩, 第 101 回触媒討論会 (P167 (注目発表)), 第 101 回触媒討論会, 討論会 A 予稿集, p.167, 2008 年 3 月 28~29 日, 東京) (3 月 29 日)
 27. YNU-2 ゼオライト前駆体のポスト処理, 小山啓人, 池田卓司, 稲垣怜史, 横井俊之, 辰巳敬, 窪田好浩, 第 101 回触媒討論会(P173 (注目発表)), 第 101 回触媒討論会, 討論会 A 予稿集, p.173, 2008 年 3 月 28~29 日, 東京) (3 月 29 日)

(4)特許出願

①国内出願 (2 件)

1. チタノシリケート及びその製法, 窪田好浩, 小山啓人, 特願2006-226279 (2006年8 月23日). 特開2008-50186 (2008年3月6日).
2. MCM-68のトポロジーを持つ結晶性多孔質シリケート及びその製法, 窪田好浩, 小山啓人, 特願2006-244056 (2006年9月日). 特開2008-63195 (2008年3月 21日).

②海外出願 (0 件)

(5)受賞等

①受賞 (0 件)

②新聞報道 (1 件)

2008 年 3 月 14 日 (金) 付 化学工業日報 第 1 面
「高活性ゼオライト触媒、横浜国大グループが開発、骨格にチタニウム」

③その他 (1 件)

日経ナノビジネス, No. 43 (2006. 8. 14), pp. 13-14.
「エマージング Tech, 東工大・横国大, らせん状のシリカ多孔体を作製」

7 研究期間中の主な活動（ワークショップ・シンポジウム等）

辰巳 G

年月日	名称	場所	参加人数	概要
平成 15年 5月 10日	キックオフミーティング	東京大学生 産研	16人	チーム研究分担の確認と 意見交換
平成 16年 3月 21日	ゼオライトの合成法す りあわせ	横浜国立大 学	5人	ゼオライトの合成法と物 質特性の相関について討 論

8 研究成果の展開

(1)他の研究事業への展開

辰巳 G

本研究で得られた成果は、規則性無機多孔質と有機物との相互作用を駆使し、無機多孔質構造を自在に制御した結果によるものである。特に①層状前駆体を利用する新しいゼオライト合成、②キラルメソポーラスシリカの合成、③規則性シリカナノ粒子の合成などは始まったばかりの研究であり、将来の発展が期待される。こらが関連する研究は、文科省の研究プロジェクト「ナノテクノロジー・材料を中心とした融合新興分野研究開発」ならびの H19 年度科学研究費補助金の研究課題に採択され引き続き研究を行う。

吉武 G

本研究で得られたメソポーラスチタニア触媒は、元素の X 線吸収から発する蛍光分光法を応用するのに都合が良いことが判明し、この研究事業とは別の研究者と共同で研究を行っていると同時に科学研究費補助金の申請課題となっている。またメソ細孔内の有機官能基分布は本研究の一つの鍵であるが、本事業で得られた知見を生かしてこの分布を実験的に見積もる方法を開発することとなった。これについては、科学研究費補助金の申請を行った。

浅岡 G

- ①環境型ナノ触媒による N_2O 分解/ $\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2 + 1/2\text{O}_2$ (Rh/ナノ酸化物-ゼオライト触媒) 【泥焼脱硫ガスの湿式脱硫後のガス中の N_2O を分解できる低温活性触媒を提供する】
- ②エンジニアリングプラスチック原料の選択合成/ $\text{C}_6\text{H}_6 + \text{X}_2 \rightarrow \text{p-C}_6\text{H}_4\text{X}_2$ (Al ポーラスゼオライト触媒) 【液相触媒を固定床流通式に変える】
- ③低品位水素源からの水素の反応回収/ $\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_3 + 3\text{H}_2 \rightarrow \text{C}_6\text{H}_9\text{CH}_3$ (Ni-ナノポーラス酸化物触媒) 【CO、 H_2S を含有する低品位水素ガスを水素源とする高耐性水素化触媒】

岩本 G

Ni-M41 の触媒作用（エチレンの反応およびバイオエタノールプロセス）は世界中の注目を集め、本年 9 月初旬に開催されるマイクロ・メゾ多孔体触媒会議、来年 4 月にニューオーリンズで開催されるアメリカ化学会で岩本にそれぞれ基調講演、招待講演の依頼があっている。さらに、本反応系は平成 20 年度からは経産省と農水省合同の国家プロジェクトに採用される予定である。このプロジェクトへの協力企業は 5 社を数える。また、トタル（仏）、BP（英）からは視察団の訪問を受け、国際共同研究の申し込みがあったが、前記の国プロとの関係で実施には至っていない。

(2)実用化に向けた展開

辰巳 G

「層状前駆体を利用する新しいゼオライト合成」、「塩基性アミノ酸を用いた規則性シリカナノ粒子の合成」に関しては本事業を通じて国内特許を申請済みである。さらに H19 年 9 月に開催される「CREST 新技術説明会」、「イノベーションジャパン：大学見本市 新技術説明会」にて発表予定であり、技術移転や実用化に向けて期待が持てる。

岩本 G

Ni-M41 の触媒作用（エチレンの反応およびバイオエタノールプロセス）は世界中の注目を集め、本年 9 月初旬に開催されるマイクロ・メゾ多孔体触媒会議、来年 4 月にニューオーリンズで開催されるアメリカ化学会で岩本にそれぞれ基調講演、招待講演の依頼があっている。さらに、本反応系は平成 20 年度からは経産省と農水省合同の国家プロジェクトに採用される予定である。このプロジェクトへの協力企業は 5 社を数える。また、トタル（仏）、BP（英）からは視察団の訪問を受け、国際共同研究の申し込みがあったが、前記の国プロとの関係で実施には至っていない。

9 他チーム、他領域との活動とその効果

(1) 領域内の活動とその効果

ケース 1 辰巳 G と國枝／荒牧 G

H15 年度、辰巳 G は Si 源としてアミノ基を有する 3-aminopropyltriethoxysilane (APS) と tetraethyl orthosilicate (TEOS) の混合物を Si 源として使用することにより、アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカ“AMS”(Anionic surfactant templated Mesoporous Silica) の合成に成功した。

メソポーラスシリカは界面活性剤ミセル水溶液に TEOS などのシリカ前駆物質を添加し、シリカの重合反応により得られる。本事業において、國枝／荒牧 G は、この過程における無秩序構造から秩序構造への転移と界面活性剤水溶液系での界面活性剤の濃縮による同様の無秩序-秩序転移の類似性に着目し、X線散乱法、赤外分光などの手法を用い、シリカ前駆物質と界面活性剤自己集合体との複合体の構造変換の機構の解明とメソポーラスシリカの構造制御をテンプレートとなる界面活性剤自己組織体の構造制御により行なうことを目的として研究を行ってきた。

アニオン性界面活性剤テンプレートを用いたメソポーラスシリカの合成系では、アニオン性界面活性剤にアミノシランを対イオンとして結合させたものをテンプレートとして用いており、特殊なケースである。そこで、辰巳 G と國枝／荒牧 G との共同研究により、アニオン性界面活性剤の有機テンプレートとシリカ前駆体による複合体の構造変換について検討した結果、初期にラメラ液晶構造を形成し、六方晶構造へと変換していくことが分かった。この知見は、AMS のメソ構造の多様化を進める上で大変有益であった。

また國枝／荒牧 G はキラルなアミノ酸誘導体型アニオン性界面活性剤分子の水溶液中での構造についての豊富な知見を有している。これらの知見がキラルメソポーラスシリカの合成の際には極めて重要であった。

ケース 2 辰巳 G と窪田 G

上記したように、辰巳 G は H15 年度において、APS と TEOS の混合物を Si 源として使用することにより、アニオン性界面活性剤を用いたメソポーラスシリカ“AMS”の合成に成功した。AMS は静電的相互作用による「シリカーAPS-界面活性剤複合体」を経由して合成されるが、この複合体から界面活性剤のみ除去することで、アミノ基で修飾されたメソポーラスシリカを得ることが可能である。

一方、窪田 G は、有機基修飾メソポーラス材料において、OFMS (= organic-functionalized molecular sieves) 型触媒と SOCM (= silicate-organic composite materials) 型触媒の調製ならびに触媒性能評価を研究実績があった。そこで、辰巳 G と窪田 G との共同研究により、H17 年度、アミノ基含有メソポーラスシリカをアニオン性およびカチオン性界面活性剤を用いて共縮合法により合成し、両者の物性および触媒性能を比較検討した結果、アニオン性の系(APS-AMS)はカチオン性の系(APS-MCM-41)よりはるかに高い活性を示すことを見出すことに成功した。

また、窪田 G らの成果である「高活性なチタノシリケート Ti-MCM-68 の合成」に際して、辰巳 G との積極的なディスカッションが行われた。

ケース 3 辰巳 G と浅岡 G

「構造変換によるゼオライト・メソポーラス構造制御グループ(辰巳グループ)」と

連携して、メタロシリケートについても、複合化を試み、環境関連技術でのゼオライト・ナノポーラスに起因する物理的性質や触媒特性について単一ゼオライト構造のメタロシリケートと比較し複合化の効果を明らかできた。

(2)領域横断的活動とその効果

無し

10 研究成果の今後の貢献について

(1)科学技術の進歩が期待される成果

辰巳 G

ゼオライトの層状前駆物質から層間拡張した新規ゼオライトの調製

二次元構造の層状化合物と三次元ミクロ孔空間を有するゼオライトの相互変換を利用して、ゼオライト層状前駆体の層間を原子サイズレベルで拡張し、新たなゼオライト構造を創製する手法を見出した。このように調製された新たなゼオライトは、従来のゼオライト触媒には無い、拡張したミクロ孔空間による高い分子認識能とゼオライト骨格に由来する高い触媒能とを併せもつことが期待でき、ゼオライト触媒分野のブレークスルーになりうる。

キラルメソポーラスシリカ

不斉炭素を有するアミノ酸含有アニオン性界面活性剤、を用いた結果、粒子がらせん状にねじれた形態で、かつ内部にキラルなメソ細孔を有するシリカの合成に世界で初めて成功した。キラルな分子を合成する触媒としては、均一系の分子触媒での成功例が多いが、純粋な無機化合物質での成功例は無い。反応場としてのメソ細孔表面のキラリティーを用いた全く新しい触媒・吸着材料が合成できれば、この分野のブレークスルーとなる。

規則性シリカナノ粒子

生体分子である塩基性アミノ酸を用いることにより、非常に簡易な液相法によってこれまでより粒子径が一桁小さいシリカのナノ粒子（サイズがおよそ 12 nm）を極めて規則的に配列させることに成功した。これまで、これほど小さい粒子が規則的に配列した報告はなく（従来の Stöber 法では 100～300nm である）、ナノ粒子分野に一石を投じるものと考えている。均一な球状粒子の規則的配列により、粒子間隙に由来する 3 次元的な均一ナノ空間を有していることもこの材料の大きな特徴である。すなわち、この材料は、単なるシリカ粒子ではなく、多孔質材料とも捉えることができる。粒子サイズの制御に加え、粒子の集合構造の形態を自在に制御することが可能になれば、従来の界面活性剤を用いる鋳型法によるナノ空間の形成とは異なった手法による新しい三次元的ナノ空間を構築ができる。

岩本 G

シリカメゾ多孔体の固体酸機能については企業の大きな注目を集め、これまでに 7 社（住友化学、三井化学、出光興産、旭化成、昭和電工、ダイセル化学工業、東京化成）に対して調製法等の技術指導を行った。この固体酸機能は従来型の酸ではうまく進行しない反応を収率よく進行させたり、逆に当然うまく行かずの反応が進行しなかったりする。この機能発現の理由は現在も検討中であるが、これまでの概念では計れない新規な機能を発見できたと考えている。

上記と関連するが、新規な酸触媒作用と細孔による中間体安定化効果を適切に組み合わせ、これまでは困難であった反応系を実現することにも成功しつつある。例えば、炭素—炭素二重結合の選択的シスジヒドロキシ化、無溶媒法による不安定中間生成物の選択的合成等である。これらの検討をさらに進めることにより、均一錯体系触媒、酵素等の極めて精密な合成反応系に迫るあるいは凌駕する触媒反応系を構築できると期待し

ている。

以上、シリカナノ多孔体の研究は世界中で実施されているが、当研究室では高表面積、大細孔径等を単純に利用する研究は一切行っておらず、ナノ多孔体ならではの機能創出・発見に成功している。このため TIE 法、固体酸機能、Ni-M41 等、当研究室の成果に追随する研究が世界で開始されつつある。本研究グループの成果は世界をリードしていると考えている。

(2)社会・経済の発展が期待される成果

辰巳 G

ゼオライトの層状前駆物質から層間拡張した新規ゼオライトの調製

二次元構造の層状化合物と三次元ミクロ孔空間を有するゼオライトの相互変換を利用して、ゼオライト層状前駆体の層間を原子サイズレベルで拡張し、新たなゼオライト構造を創製する手法を見出した。このように調製された新たなゼオライトは、従来のゼオライト触媒には無い、拡張したミクロ孔空間による高い分子認識能とゼオライト骨格に由来する高い触媒能とを併せもつことが期待でき、ゼオライト触媒分野のブレークスルーになりうる。

キラルメソポーラスシリカ

不斉炭素を有するアミノ酸含有アニオン性界面活性剤、を用いた結果、粒子がらせん状にねじれた形態で、かつ内部にキラルなメソ細孔を有するシリカの合成に世界で初めて成功した。キラルな分子を合成する触媒としては、均一系の分子触媒での成功例が多いが、純粋な無機化合物質での成功例は無い。反応場としてのメソ細孔表面のキラリティーを用いた全く新しい触媒・吸着材料が合成できれば、この分野のブレークスルーとなる。

規則性シリカナノ粒子

均一なサイズのシリカ粒子は触媒担体、吸着剤、写真乳剤、光学フィルター、医薬、クロマトグラフィー、センサー、スタビライザー、コーティング剤、光滑剤、粘着剤等様々な分野で利用されている。塩基性アミノ酸を用いることにより、非常に簡易な液相法によってこれまでより粒子径が一桁小さいシリカのナノ粒子（サイズがおよそ 12 nm）を極めて規則的に配列させることに成功した。上記したような様々な分野での実用化が期待できる。

浅岡 G

- ①環境型ナノ触媒による N_2O 分解/ $\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2 + 1/2\text{O}_2$ (Rh/ナノ酸化物-ゼオライト触媒) 【泥焼脱硝ガスの湿式脱硫後のガス中の N_2O を分解できる低温活性触媒を提供する】
- ②エンジニアリングプラスチック原料の選択合成/ $\text{C}_6\text{H}_6 + \text{X}_2 \rightarrow \text{p-C}_6\text{H}_4\text{X}_2$ (Al ポーラスゼオライト触媒) 【液相触媒を固定床流通式に変える】
- ③低品位水素源からの水素の反応回収/ $\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_3 + 3\text{H}_2 \rightarrow \text{C}_6\text{H}_9\text{CH}_3$ (Ni-ナノポーラス酸化物触媒) 【 CO 、 H_2S を含有する低品位水素ガスを水素源とする高耐性水素化触媒】

岩本 G

Ni-M41 の触媒作用（エチレンの反応およびバイオエタノールプロセス）は世界中の注目を集め、本年9月初旬に開催されるマイクロ・メゾ多孔体触媒会議、来年4月にニューヨークで開催されるアメリカ化学会で岩本にそれぞれ基調講演、招待講演の依頼がされている。さらに、本反応系は平成20年度からは経産省と農水省合同の国家プロジェクトに採用される予定である。このプロジェクトへの協力企業は5社を数える。また、トタル

(仏)、BP（英）からは視察団の訪問を受け、国際共同研究の申し込みがあったが、前記の国プロとの関係で実施には至っていない。

1 1 結び

ナノオーダーで構造・組織等を制御することにより、これまでになく高効率・高選択的にかつ環境負荷を低く化学物質等を合成あるいは処理することが可能な新触媒・新材料・システム、環境負荷の低い新材料等を創製し、環境改善・環境保全に貢献することが目標であった。環境負荷の高い合成プロセスをナノ構造制御触媒等により低環境負荷型に代替する技術に係わる研究、高効率分離・吸着機能・高立体選択的表面・触媒等の高機能・新機能を有するナノ構造材料等の創製に係わる研究、すなわちグリーンナノケミストリーに加え、排ガス・排水中に含まれる化学物質、環境中に存在する化学物質等を高効率・高選択的に分離・除去、分解、無害化するナノ構造制御触媒の開発に係わる研究、これらを組み込んだシステムの創製に係わる研究、ナノ空間機能を反応場として活用したナノリアクター等の創製を目指す研究、環境負荷の低いナノ制御構造材料に係わる研究等が含まれる。

マテリアル合成と触媒としての応用が連携

ゼオライト触媒の高機能化

キラルなメソポーラスシリカの合成、材料合成の大きな成果である。今後、グリーン触媒として目標とする反応を絞り込み、従来のプロセスと比較して、どのような点で、どの程度、環境負荷低減に貢献できるかを明示されることを期待したい。

研究の目標等から見た達成度

規則性多孔体であるゼオライトおよびメソポーラス材料を対象にし、ナノオーダーで構造・形態を制御することにより、これまでになく高効率・高選択的にかつ環境負荷を低く化学物質等を合成あるいは処理することが可能な新触媒・新材料を創製し、環境改善・環境保全に貢献することが目標であった。上記で記述したようにほぼ目標に到達することが出来た。特に、新触媒・新材料の創製といった観点では十分な達成度であると考えている。



高分解能走査電子顕微鏡
(Hitachi S-5200)

得られた成果の意義

特筆すべき成果として、ゼオライト触媒の新規調製法の開発ならびに高機能化（辰巳G）、キラルなメソポーラスシリカの創製（辰巳G）、界面活性剤系の状態図を用いたメソ構造体の設計（國枝／荒牧G）、ゼオライト構造の複合化（浅岡G）、有機基修飾型および遷移金属酸化物型メソポーラス物質の高機能化（吉武G）、ナノ多孔体ならではの機能創出・発見（岩本G）、12-10員環ゼオライトの新展開（窪田G）を達成することができた。ここでの成果を基に、新たな競争的資金・研究事業へ展開することが決まっているものもあり、得られた成果は今後の発展が大いに見込まれる。

環境改善・環境保全に貢献しうる新触媒・新材料を創製することができた。今後、従来のプロセスと比較して、環境負荷低減に対して具体的にどのように貢献できるかが明らかになり、実用化されることを期待したい。

今後の研究の展開

研究代表者としてのプロジェクト運営について

・チーム全体の研究遂行、

全体としてマテリアル合成と触媒・吸着剤としての応用を連携しながら研究を行ってきた。チーム内での研究コラボレーション、研究上の課題解決などもいくつか実施することができた。その結果、各グループの特色を活かした革新的な研究成果を生むことができた。

・研究費の使い方、

各グループの研究計画ならびに進捗状況を把握しながら、人件費、設備費、消耗品費、出張費等、研究費を適正に使用することが出来たと考えている。有能な事務員、ポスドクを雇用することができ、円滑に研究を実施できた。また、各グループとも最新の研究設備を導入することができ、効率よく研究を実施できた。それらの設備を積極的に用いたおかげで、達成できた成果もいくつかあった。

・若手研究者の育成等

今回得られた成果は、各グループリーダーの指導の下、助教、ポスドクに加え学生が一丸となって目標に向かって精力的に研究に取り組んだ結果である。助教やポスドクに加え学生に対してもシンポジウムや学会へ積極的に参加並びに発表する機会を十分に与えることができた。シンポジウムや学会等では他グループのみならず他チームとの有意義な交流を行った。以上、本研究プロジェクトの実施は、同時に若手研究者の育成にもつながったといえる。



辰巳G集合写真
(2007年4月)

12. 自己評価

辰巳 G

ゼオライト、メソポーラスシリカなどの規則性無機多孔体において、シリカと有機物との相互作用を駆使して、これらの多孔質構造を自在に制御することができるようになった。また、得られた無機多孔体は、医薬品、液晶、有機電子材料などのファインケミカルズ合成プロセスにおけるグリーン触媒として利用可能であることを証明できた。

國枝／荒牧 G

水溶性のシリカ前駆物質を利用することにより、シリカ前駆物質を界面活性剤分子集合体構造制御のための添加物の一つとして考えることにより、従来の知見を生かしてメソポーラスシリカの構造形成機構を解明することができた。また、メソポーラス材料の構造デザインを界面活性剤系の状態図を用いて行なうという新しいコンセプトを示すことができた。これらの成果により今後メソポーラス材料の構造デザインをより精密に行なうことが可能になるものと期待できる。

吉武 G

新しい規則性メソ構造を有する有機シリカ類を合成し、ミクロ～メソ構造を解明し、重金属イオンなど環境毒性の強い陽陰イオン吸着剤としての応用を図ることができた。有機官能基を有するシリケートメソ構造体は、メソ細孔の制御と官能基間距離・配向の制御と組み合わせ、有機的に機能させることが可能なため、分子認識能発現による高度物質分離への研究へと発展する予定である。メソポーラスチタニアをはじめとするメソポーラス遷移金属酸化物は、非晶質などバルクの構造が異なっている場合において、従来とは大きく異なる機能をもたらすことが明らかになりつつある。

浅岡 G

ナノオーダーの構造単位を有するナノポーラス構造体とゼオライトを構造複合することによって、触媒活性を発揮するゼオライト種の結晶サイズを制御し、触媒としての活性・選択性・寿命の向上を図ることができた。今後は、ゼオライト合成場 *in situ* マイクロリアクター化、および中位のゼオライト的酸性を反応の場としてもちかつナノポーラスなアクセスの場をもつ触媒系として調製する方法の2つの創造的技術に基づくナノポーラス複合触媒を用いて、環境技術、地球環境的エネルギー技術、環境調和型化学プロセスへの戦略的技術適用が図れる。構造複合によるゼオライト・ナノポーラス構造制御による協奏的ナノ触媒の適用例を増えとともに、広く適用できる技術として期待できる。

岩本 G

上記で記述したようにほぼ計画通りに進展している。固体酸機能、Ni-M41 の触媒作用に関する研究では当初計画よりも進展している。特に後者においてバイオエタノールの低級オレフィン化を高収率で達成できたことは予想外の結果であり、平成20年度からの国プロによりさらに進展することを期待している。メソ多孔体の固体酸機能は従来の酸塩基概念と明らかに異なる酸機能であることがますます明確になりつつあり、その全貌解明に向けて研究を続けていく。

窪田 G

無機の規則性多孔体と高度に設計・合成された有機化合物との相互作用を駆使し、規則性多孔体のマイクロ構造およびマクロ形態を制御する手法を確立した。得られた知見を、付加価値の高いファインケミカルズ合成における環境調和型触媒の創製に活かすことができた。