

持続可能な材料設計に向けた確実な結合とやさしい分解
2021 年度採択研究代表者

2022 年度
年次報告書

伊與木 健太

東京大学 大学院工学系研究科
講師

リサイクル可能な原料でリサイクル可能な多孔体を合成

研究成果の概要

2022年度は研究計画書に従って展開しているリサイクルに関する研究に加え、本研究により得られた特徴あるゼオライトは応用面においても有用であることがわかってきており、触媒や吸着材としての性能評価も行った。これまで検討していた光反応性有機分子について、新たにゼオライトが合成可能であることを見出すとともに、同様の機構で光重合、光開裂が可能な種々の分子をベースとした有機構造規定剤を合成した。層状ケイ酸塩は層間架橋により3次元細孔を有する構造を形成可能であることが知られているが、架橋金属が層内に入る、欠陥からマイグレートしたシリケート種が層間を架橋してしまう、といった課題があった。これに対して、あらかじめ層状ケイ酸塩を処理することで、層間を架橋する原子の状態が変化することを示した。また、合成後のゼオライトの組成をチューニングするためには、ゼオライト骨格そのものを保った状態で、特定の原子を脱離させ、さらに脱離した化学種が細孔内を拡散する必要がある。これまで骨格から脱離したAl種などはゼオライトの中でも小さな細孔(酸素8員環からなる小細孔)は通らないとされてきたが、細孔が一部開裂することで細孔径が拡大し通過可能となることが分かっている¹⁾。さらに、ゼオライトに対する骨格再構築処理が、種々の特性を変化させることを見出した。具体的には、NO_xの選択還元¹⁾やMethanol-to-olefins反応^{2,3)}、CO₂水素化などの触媒反応をプローブとして、活性の変化が見られたことから、結晶構造や粒子径といったマクロな性質が変化しないまま、よりミクロな原子配置などの変化が起こっていることが示唆された。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Tatsushi Yoshioka, **Kenta Iyoki**, Yuusuke Hotta, Yoshihiro Kamimura, Hiroki Yamada, Qiao Han, Takeharu Kato, Craig A. J. Fisher, Zhendong Liu, Ryohji Ohnishi, Yutaka Yanaba, Koji Ohara, Yukichi Sasaki, Akira Endo, Takahiko Takewaki, Tsuneji Sano, Tatsuya Okubo, Toru Wakihara, “Dealumination of small-pore zeolites through pore-opening migration process with the aid of pore-filler stabilization” *Science Advances*, 8, eabo3093, 2022 DOI: 10.1126/sciadv.abo3093
- 2) Masanori Takemoto, **Kenta Iyoki**, Yuki Otsuka, Hiroaki Onozuka, Anand Chokkalingam, Toshiyuki Yokoi, Susumu Tsutsuminai, Takahiko Takewaki, Toru Wakahira and Tatsuya Okubo “Robust CON-type zeolite nanocatalyst in methanol-to-olefins reaction: downsizing, recrystallisation and defect-healing treatments toward prolonged lifetime” *Materials Advances*, 3, 5442-5450, 2022 DOI: 10.1039/d2ma00343k
- 3) Takumi Shibuya, **Kenta Iyoki**, Hiroaki Onozuka, Masanori Takemoto, Susumu Tsutsuminai, Takahiko Takewaki, Toru Wakihara, and Tatsuya Okubo, “Control of Competitive Structure-Directing Effect in CON-Type Zeolite Synthesis via Intermediate Addition Method” *Crystal Growth & Design*, in press