

超臨界水を用いた新規担持触媒調整手法の検討

著者	澤井 理
発行年	2006
URL	http://hdl.handle.net/2261/7719

平成19年 2月15日

氏名

澤井 理



21世紀COEプログラム

拠点：大学院工学系研究科

応用化学専攻、化学システム工学専攻、

化学生命工学専攻、マテリアル工学専攻

“化学を基盤とするヒューマンマテリアル創成”

平成18年度リサーチ・アシスタント報告書

ふりがな 氏名	さわい おさむ 澤井 理	生年月日
所属機関名	東京大学大学院 工学系研究科 化学システム工学専攻	
所在地	〒277-8563 千葉県柏市柏の葉5-1-5 環境棟420号室	
申請時点での 学年	博士課程1年	
研究題目	超臨界水を用いた新規担持触媒調製手法の検討	
指導教員の所属・氏名	新領域創成科学研究科 環境システム学専攻 大島 義人	

I 研究の成果 (1000字程度)

操作が容易で低コストで行える含浸法は、固体触媒の調製において一般的な手法の一つである。しかし、その調製が液相中で行われるため担持微粒子の不均一化現象が常に課題とされてきた。我々はこの含浸法に代わる新しい担持固体触媒調製法として「超臨界水含浸法」を提案する。本手法は、微粒子合成に適しているといえる超臨界水を晶析溶媒として用いる全く新規な調製法である。超臨界水中の反応を利用する超臨界水含浸法は、金属及び金属酸化物の晶析を極めて急速に起こさせることで不均一化現象が解消できると予想される。本研究では、超臨界水を晶析溶媒として用いた無機材料、特に担持固体触媒調製法の開発を目標とした。超臨界水を利用した担持技術の統一的な方法論の確立という今後の展開を見据え、微粒子の担持メカニズムの解明や反応パラメータが担持粒子の粒径、組成、形態に与える影響などについて重点的に検討を行った。

実験操作は、回分式反応器に金属塩水溶液及びアルミナ担体を充填し超臨界領域下で所定の時間反応させることで触媒を調製する。酢酸マンガン水溶液と球状のアルミナ担体を充填して行った実験からは球体担体の表面から約0.5 mmの深さまで egg-shell 型に変色している様子が観察された(図1)。SEM-EPMA 及び XRD により変色した領域には酸化マンガンが析出していることが確認できた。また、実用的なエチレンオキシド合成触媒である銀/ α -アルミナ触媒をモデルとし、酢酸銀水溶液と α -アルミナ粉末を充填して実験を行った。TEM-EDS により 20 nm 程度の銀粒子が担体表面上に分散度よく担持されることが確認できた(図2)。また、微粒子の担体表面担持メカニズムについては2つのスキームを仮定し、実験的に検証した。この他にも並行して反応時間、温度、担体の存在などの反応パラメータが与える銀粒子への影響について検討を行った。その結果、反応時間の長さにより担持粒子径のコントロールが可能であることや温度により粒子の形態を変化させられること、また担体の存在がバルク相での粒子成長を抑制する効果があることが示された。

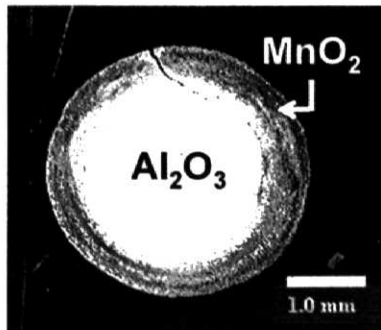


図1 超臨界水含浸法により調製した MnO_2 /アルミナ

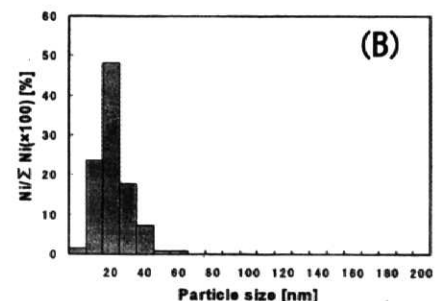
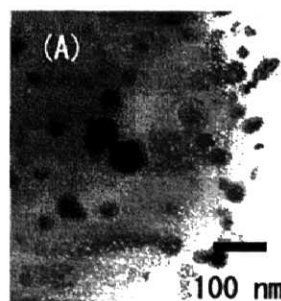


図2 反応時間1分で調製した銀/ α -アルミナ；(A) TEM像、(B) 銀微粒子の粒度分布

氏 名 澤 井 理

- Ⅱ (1) 学術雑誌等に発表した論文A (掲載を決定されたものを含む.)
共著の場合、申請者の役割を記載すること。
(著者、題名、掲載誌名、年月、巻号、頁を記入)

氏 名 澤 井 理

II (2) 学会において申請者が口頭発表もしくはポスター発表した論文
(共同研究者(全員の氏名)、題名、発表した学会名、場所、年月を記載)

国際会議における発表

- Osamu SAWAI, Kohei IMAI, Yoshito OSHIMA, Mechanism of silver nano-particles formation on the surface of porous materials using supercritical water, ISHR & ICSTR 2006, Sendai, Japan, Aug. 5-9, 2006 (ポスター、査読あり)
- Osamu SAWAI, Kohei IMAI, Yoshito OSHIMA, Mechanism of Silver Nano-particles Deposition on Porous Materials using Supercritical Water, ISSF2006 2006, Kyoto, Japan, Nov. 5-8, 2006 (口頭発表、査読あり)

国内学会・シンポジウムなどにおける発表

- 澤井理、今井結平、大島義人、超臨界水中の水熱微粒子合成を利用した新規担持触媒調製法の提案、粉体工学会第41回技術討論会および製品展示会、アルカディア市ヶ谷(私学会館)、東京、6/20-21, 2006 (口頭発表)
- 澤井理、今井結平、大島義人、超臨界水熱合成法を用いた多孔質材料への微粒子担持メカニズムの検討、化学工学会第38回秋季大会、福岡、9/16-18, 2006 (口頭発表、採択決定)