

平成 17 年 3 月 日

氏名 氏 名 竹井 豪



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 16 年度リサーチ・アシスタント報告書

ふりがな 氏 名	たけい ごう 竹井 豪	生 年 月 日
所属機関名	東京大学大学院 工学系研究科 応用化学専攻	
所在地	文京区本郷 7-3-1	
申請時点での 学 年	博士課程 1 年	
研究題目	半導体光触媒を集積化したマイクロ化学システムの構築	
指導教官の所属・氏名	北森武彦教授(応用化学専攻)	

I 研究の成果 (1000 字程度)

電位制御可能な光触媒集積化マイクロチャンネルチップ (PC-TiO₂-MC) を以下の手順で作製した。上板には分岐型流路(幅 300 μm、深さ 5 μm)を、下板には Pt 電極基板上に TiO₂ 薄膜(膜厚:100 nm)をゾル・ゲル法により成膜し、両基板を熱融着(650 °C, 4 hr)した(Fig. 1)。また、合成反応に用いるため、光析出法により Pt を担持した。

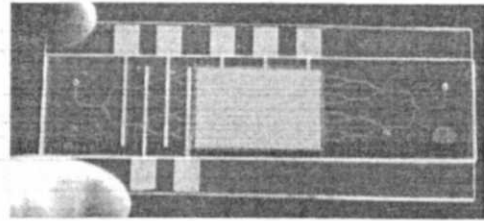


Fig. 1 PC-TiO₂-MC

反応例として、L-ピペコリン酸(L-PCA)の合成反応 2 を採り上げた(Fig. 2)。ポテンシオスタットによる電位制御下(-0.8~+0.2 V vs Pt)、Ar 飽和した L-リジン水溶液(5 mM)を送液しながら光照射(300~400 nm)した。生成物は HPLC により分析した。比較のため、微粒子分散系(P-25)を用いたバルク実験を行った。PCA 選択率 (=PCA の生成量/L-リジンの消費量)と光学純度 (ee)を評価の指標とした。

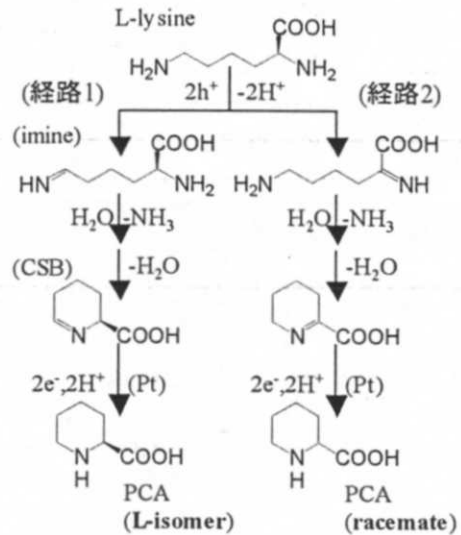


Fig. 2 L-ピペコリン酸合成の反応スキーム

結果を Fig. 3 に示す。選択率、ee とともに印加電圧に依存し、バルク実験で得られた結果と比較して高選択率、高 ee となった。本反応では図 2 に示すように、中間体である CSB の還元効率により選択率が、また 2 つのアミノ基のどちらが酸化されるか(経路 1 or 経路 2)により ee が決定される。負電位印加により、CSB の還元が効率的に進行するため選択率が上昇したと考えられる。また、正電位印加により、TiO₂ の酸化力が強くなるために、e 位のアミノ基酸化(経路 1)の割合が上昇し、ee が向上したと考えている。ee の電位制御が PC-TiO₂-MC を用いることにより初めて可能となった。なお目的生成物である L-PCA の収率は、選択率、ee のバランスにより決定され-0.8 V vs Pt の時最大(バルク反応の 1.8 倍)となった。TiO₂ 薄膜を PC-TiO₂-MC として利用することで、転化速度が速く、高選択的な光触媒合成反応を実現できた。

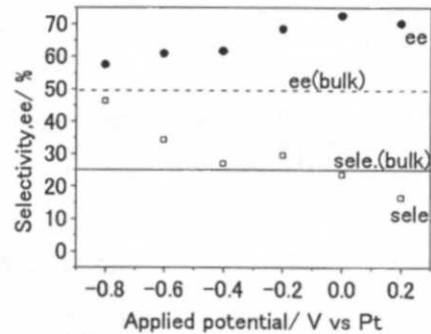


Fig. 3 選択率と ee の印加電位依存性

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)

竹井豪, 北森武彦, 金幸夫

酸化チタン薄膜を集積化したマイクロチャネルチップを用いた光触媒反応
化学と工業, 58(2), 147-149(2005)

Go Takei, Takehiko Kitamori and Haeng-Boo Kim

Photocatalytic redox-combined synthesis of L-pipecolinic acid with a
titania-modified microchannel chip

Catal. Commun., in press

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)

G. Takei, T. Kitamori and H-B. Kim

"PHOTOCATALYTIC REDOX-COMBINED SYNTHESIS WITH
FABRICATION OF TiO₂ FILM INTEGRATED MICROCHANNEL CHIP"

Conference on Photochemical Conversion and Storage of Solar Energy (IPS-15)
Paris, France, 2004/7/4-9

Go Takei, Takehiko Kitamori, Haeng-Boo Kim

"Photocatalytic redox-combined synthesis with TiO₂ intergated microchannel"
MicroTAS 2004

Malmo, Sweden, 2004/9/26-30

Go Takei, Takehiko Kitamori and Haeng-Boo Kim

"Photocatalytic Redox-Combined Reaction with TiO₂ Film Modified
Microchannel Chip: Applied Potential Dependence of Selectivity and
Enantiomeric Excess"

206th Meeting of The Electrochemical Society
Hawaii, USA, 2004/10/3-8

○竹井豪、北森武彦、金幸夫

「TiO₂ 薄膜集積化マイクロチャネルチップによる電位制御光触媒反応」
第9回化学とマイクロ・ナノシステム研究会 2004/5/21-23 京都大学桂キャンパス

○竹井豪、北森武彦、金幸夫

「TiO₂ 集積化マイクロチャネルチップによる光触媒反応の電位依存性」
2004年光化学討論会 2004/11/1-3 つくば国際会議場

○竹井豪、小出輝、北森武彦、金幸夫

「ナノ微粒子修飾界面によるマイクロチャネル内光流体制御」
日本化学会第85春季年会 2005/3/26-29 神奈川大学横浜キャンパス