

平成 19 年 2 月 28 日

氏名 鈴木 泰裕



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	すずき やすひろ 鈴木 泰裕	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	東京都文京区本郷7-3-1工学部5号館309	
申請時点での 学年	博士課程2年	
研究題目	大細孔径ゼオライトの合理的合成・製造手法の確立を目指した ゼオライト結晶化過程における前駆体のリング構造の解析	
指導教員の所属・氏名	東京大学大学院工学系研究科化学システム工学専攻 大久保 達也	

I 研究の成果 (1000字程度)

本研究は、水熱合成によるゼオライトの形成メカニズムに関して、その結晶化の全過程を原子レベルで解明し、合理的合成手法を確立することを目的としている。

図1に各非晶質ゼオライトと非晶質シリカの構造因子 $S(Q)$ をフーリエ変換して得られた全相関関数 $T(r)$ を示す。1.6-1.7 Å のピークは Si-O (1.6 Å), Al-O (1.7 Å) が重なったものである。2.2, 2.6, 3.1 Å はそれぞれ Na-O, O-O, Si-Si(AI) に対応する。3.5 Å 以上のピーク、すなわち第二近接 Si(AI)-O や Si(AI)-Si が関与する、いわゆる中距離構造には大きな違いが見られる。非晶質シリカの研究より、このピークは、主に 4 員環の第二近接 Si(AI)-O 由来のものであると考えられる。非晶質シリカと比べると、いずれの非晶質ゼオライトにもショルダーピークがある。特に非晶質 LTA と非晶質 FAU のピークは大きい。つまり低 Si/Al 比のゼオライトへ変化する非晶質ゼオライトには、すでに 4 員環が多く含まれていることが示唆された。以上

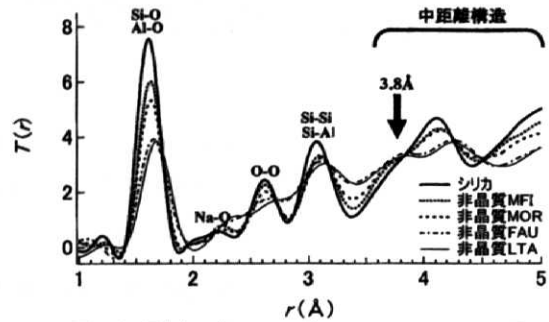


Fig.1 $T(r)$ of amorphous precursors of various aluminosilicate zeolites

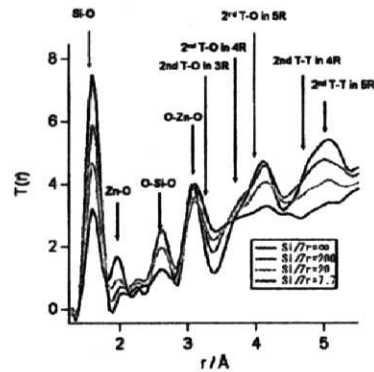


Fig.2 $T(r)$ of different zincosilicate amorphous precursors with different Si/Zn

より、非晶質ゼオライトのリング構造(ネットワーク構造)と最終生成物であるゼオライト結晶の構造には相関がある、すなわち結晶化前である非晶質ゼオライトがすでに最終生成物であるゼオライトに類似したリング構造を持っていることを示唆する結果が得られた。

最近の実験に用いたジンコシリケートゼオライトである VPI-7 に特徴的であり大細孔径実現のためのキーとなるであろう 3 員環は、今まで我々が解析してきたゼオライトの主要構造である 4 員環や 5 員環と比べると、他の結合に起因するピークとのオーバーラップや存在比の低さなどにより解析が困難であった。しかし、VPI-7 の結晶化初期段階を含む Si/Zn 比の異なる一連の非晶質試料の動径分布関数を比べることにより(図 2)、Zn の添加量の増加に伴い、確かに 3 員環の生成量が増えていることを明らかにした。さらに、VPI-7 の結晶化過程を詳細に解析することにより、結晶化初期段階では 3 員環が先に生成し、それを含む前駆体が結合していき、結果として 4 員環や 5 員環がその後形成されていくことがわかった。

現在はこれらの知見を参考にして、3 員環を含む前駆体に適当な無機カチオンを途中添加することなどにより結晶化過程を制御し新規ゼオライトの合成を目指した研究が進行中である。

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)

(1) Toru Wakihara, Wei Fan, Yasubiro Suzuki, Shinji Kohara, Gopinathan Sankar, Masaru Ogura and Tatsuya Okubo, 'Role of heteroatoms in precursor formation of zeolites', *Studies in Surface Science and Catalysis*, in press

役割 サンプルの合成と結果の分析等

(2) Toru Wakihara, Yasubiro Suzuki, Wei Fan, Seijiro Saito, Shinji Kohara, Gopinathan Sankar, Manuel Sanchez-Sanchez, Masaru Ogura and Tatsuya Okubo, 'Changes in the medium range order during crystallization of aluminosilicate zeolites characterized by high-energy X-ray diffraction technique', submitted

役割 サンプルの合成と結果の分析等

氏 名 鈴木 泰裕

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)

1. Yasuhiro Suzuki, Tatsuya Okubo, Toru Wakihara, Wei Fan, Masaru Ogura, Shinji Kohara and
Gopinathan Sankar

題名 「Influences of Heteroatoms on Ring Distribution in Amorphous Precursors」

学会名 「International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals」

場所 鳥取県米子市

年月 2006年7月