

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

所属機関・部局 早稲田大学・理工学術院

職・氏名 教授・下嶋^{しもじま} 敦^{あつし}

- (和文) 天然層状ケイ酸塩のトポタクティック変換による多孔質ケイ酸塩の合成

(英文) Topotactic transformation of naturally occurring layer silicates into porous framework silicates

- 平成 31年 1月 1日 ～ 令和 3年 12月 31日 (3年 0ヶ月)

- (1) 日本側参加者 12 名 (2) 相手国側参加者 1 名

- | 物品名 | 仕様
型・性能等 | 数量 | 単価(円) | 金額(円) | 設置研究機関名 | 備考 |
|-----|-------------|----|-------|-------|---------|----|
| | | | | | | |

- 1 -

8. 研究実施状況

※ 申請書の内容及び当該年度実施計画書の「5. 本年度実施計画の概要」と対応させつつ、当該年度の研究の実施状況を簡潔に記入してください。年度途中で当初計画を変更した場合にはその内容及び理由も明記してください。

本年度は、前年度に選定した 1)天然層状ケイ酸塩、または 2)人工的に合成可能な層状ケイ酸塩を利用し、反応性の調査を行った。

1)天然層状ケイ酸塩 Magadiite の分析と反応性調査

昨年度から本年度にかけてのドイツ側の研究進捗として、天然層状ケイ酸塩 Magadiite の結晶構造解析に進展があった。このため、日本側でも天然に産出した Magadiite を少量入手し、今後の反応性調査における基礎的な知見を得ることを目的として分析を行った。XRD、固体 ^{29}Si MAS NMR 測定より、人工的に合成した場合の Magadiite の測定データと比較して結晶性の高い試料であることを確認し、ドイツ側の分析結果と一致していることも確認した。

また、反応性調査に関わる実験・分析では試料量を多く必要とするため、人工合成が可能かつ結晶性の良い Magadiite の合成を試みた。水熱合成条件を検討することで、従来の水熱合成法により合成した試料と比べて結晶性が向上した Magadiite の合成に成功した。この合成条件にて Magadiite を大量合成し、得られた試料に対して酸処理とアミド分子存在下での加熱処理を行った。結果として、Magadiite 層間へのアミド分子の導入を確認した。また、アミド分子導入後の試料を焼成したところ、XRD パターンより、底面反射由来のピークが高角度側にシフトし、かつ固体 ^{29}Si MAS NMR 測定からは SiOH 基由来のシグナルの消失を確認したことから、結晶性を保持しつつ層間縮合が進行した可能性がある。次年度ではこの試料の詳細な分析を進めるとともに、ドイツ側とも共同で構造解析を進める予定である。

2)人工的に合成可能な層状ケイ酸塩（層状オクトシリケート）の反応性調査

昨年度予備的検討を進めていた層状オクトシリケート層表面の有機修飾法について、触媒の有無と修飾に用いる有機シランカップリング剤の種類によって層間シラノール基の修飾率が異なることを見出した。一部結果に関しては、投稿論文を作成中である。

また、昨年度報告した層状ケイ酸塩 Magadiite 等の層間陽イオンを長鎖ジメチルアンモニウムイオンで交換し、ソルボサーマル処理を行うことで一部のケイ酸塩層が巻く（スクロール）現象に関して、一部の成果を英国王立化学会発行の Nanoscale 誌に発表した。

本年度は日独研究者間でメールにてミーティングを行うのみならず、6 月に日本側研究者（2 名）をドイツ側に派遣し、ドイツ側の共同研究者と進捗報告・ディスカッションを行った。ドイツ側研究代表者は当初令和 2 年 3 月中旬の来日を希望していたが、新型コロナウイルスの影響等で来日が不可能となった。

9. 研究発表（平成 年度の研究成果）

〔雑誌論文〕 計（1）件 うち査読付論文 計（1）件

通番	共著の有無*1	論文名、著者名等*2
1		“Formation of silicate nanoscrolls through solvothermal treatment of layered octosilicate intercalated with organoammonium ions”, Yusuke Asakura, Megumi Sugihara, Takeru Hirohashi, Aya Torimoto, Takuya Matsumoto, Masakazu Koike, Yoshiyuki Kuroda, Hiroaki Wada, Atsushi Shimojima and Kazuyuki Kuroda, Nanoscale, 2019年6月、11巻、27号

〔学会発表〕 計（7）件 うち招待講演 計（1）件

通番	共著の有無*1	標題、発表者名等*2
1		“Some Recent Developments in the Synthesis of Inorganic Functional Nanomaterials”、K. Kuroda, NANOAPP 2019 Nanomaterials & Applications, 2019年
2		“Preparation of All-silica RWR -type Zeolite Containing Pt Nanoparticles through Interlayer Condensation of Layered Octosilicate”, M. Koike, R. Sakai, H. Wada, A. Shimojima and K. Kuroda, 19th International Zeolite Conference (IZC'19), 2019年
3		“Effect of ammonium fluoride on interlayer silylation of layered silicate with organoalkoxysilanes”, M. Yatomi, M. Koike, Y. Murakami, S. Saito, H. Wada, A. Shimojima, N. Rey, S. Carenco, C. Carcel, D. Portehault, M. Wong Chi Man, C. Sanchez and K. Kuroda, 3rd International Symposium of Silsesquioxane-based Functional Materials, 2019年
4		有機アルコキシシランによる層状ケイ酸塩のシリル化反応におけるフッ化物イオンの効果、彌富昌、小池正和、村上優樹、齋藤祥平、和田宏明、下嶋敦、Nadège Rey, Sophie Carenco, Carole Carcel, David Portehault, Michel Wong Chi Man, Clément Sanchez, 黒田一幸、第9回CSJ化学フェスタ、2019年
5		かご型シロキサンをピラーとして用いた層状オクトシリケートの多孔体化、岡洋介、小池正和、佐藤尚人、和田宏明、下嶋敦、黒田一幸、第9回CSJ化学フェスタ、2019年
6		“Preparation of sodalite containing Cu nanoparticles through simple interlayer condensation of Cu ²⁺ ion-exchanged layered silicate RUB-15”, R. Sakai, M. Koike, H. Wada, A. Shimojima and K. Kuroda, International Symposium on Porous Materials 2019, 2019年
7		白金前駆体を導入した層状オクトシリケートの層間縮合による白金ナノ粒子含有 RWR 型ゼオライトの作製、小池正和、坂井梨花、和田宏明、下嶋敦、黒田一幸、公益社団法人日本セラミックス協会2020年年会、2020年

〔図 書〕 計（0）件

通番	共著の有無*1	題名、著者名等*2
1		

* 相手国研究代表者との共著（共同発表）がある場合は○、相手国研究代表者との共著であり謝辞等に事業名を明記している場合は◎と記入。

** 当該発表等を同定するに十分な情報を記載すること。例えば学術論文の場合は、論文名、著者名、掲載誌名、巻号や頁等、発表年（西暦）、学会発表の場合は標題、発表者名、学会等名、発表年（西暦）、著書の場合はその書誌情報、など（順番は入れ替わってもよい）。

*** 足りない場合は適宜行を追加すること。

1. この報告書は、最終年度を除く毎年度提出してください。
2. 本会の事業報告等に記載するための適当な図・写真等があれば、説明を付して添付してください。
3. この報告書は、本共同研究の成果として本会ウェブサイトに掲載します。また、この報告書を本会の事業報告として刊行する場合、内容に影響しない範囲で修正を行うことがあります。
4. 知的財産権等の事情で本報告書の一部の公開を希望しない場合は、対応についてあらかじめ本会担当者に相談してください。