



研究課題名 よく定義されたゼオライト合成と詳細な構造組織の総合的理解

東北大学・多元物質科学研究所・教授

むらまつ あつし
村松 淳司

研究課題番号： 21H05011

研究者番号： 40210059

研究期間： 令和3年度～令和5年度 研究経費（期間全体の直接経費）： 149,400千円

キーワード： ゼオライト、同型置換、精密構造解析、放射光

【研究の背景・目的】

ゼオライトは、規則性多孔体の結晶材料であり、細孔構造に起因するナノ空間と、骨格内に導入されたヘテロ原子による優れた触媒作用を示すことが知られている。さらに、結晶構造によって異なる細孔径を有するため、触媒反応において特異的な形状選択性を発現する。近年、結晶構造や導入するヘテロ原子の種類に応じた機能など、マクロな視点での情報がデータベースや論文として蓄積されている一方で、ヘテロ原子の導入位置制御法や、結晶化機構等、ゼオライトに関する真に重要なサイエンスは未解明なままである。ゼオライトの物性は、骨格内に導入されるヘテロ原子の種類、量、位置に大きく依存するが、導入位置の精密制御法は、未だ確立されていない。これは、専ら、現在までの解析手段では、間接的な証拠をかき集めてぼんやりとした位置の特定しか行えていないためである。したがって、ヘテロ原子の精密導入を可能とするゼオライト合成技術と、原子レベルで直接原子位置を可視化する高度な解析技術の創出がゼオライト科学の革新に必要不可欠である。本研究では、合成したゼオライトの原子レベルでの局所構造解析は勿論のこと、それに基づくゼオライト結晶化機構の解明、さらには新しいゼオライト材料の創製を目指す。

【研究の方法】

現状、ゼオライト骨格へと導入されたヘテロ原子の微細構造上の正確な位置の特定は達成できておらず、真に精密に組成・構造制御されたゼオライトの合成とその応用研究にとって大きな障壁となっている。その一方で、放射光を用いた材料解析は、近年目著しく発展を遂げている。そこで、本研究では、多面的なアプローチにより、「よく定義されたゼオライト合成」を行う。また、放射光を用いた新しい局所構造解析手

法を開発し、それに基づく結晶化機構の解明を行うことで、ゼオライト科学においてブラックボックスとされてきた多くの謎を解き明かす。

合成面においては、「メカノケミカル法」、「電荷バランスを利用した原子位置制御」、「前駆体設計によるアプローチ」を主軸として研究を進める。これらの手法を駆使することで、ヘテロ原子を骨格中に均一に導入、さらには、特定のサイトに選択的に導入することが可能になる。放射光を用いた構造解析では、放射光X線の全散乱・異常散乱、X線吸収分光、粉末X線構造回折と電子密度分布解析などを用いてゼオライトの局所構造解析を行っていくことで、アモルファスから、結晶性の高い“よく定義された”材料になるまでの合成プロセスを含めて、構造組織の不均一性の評価を行う。これらの解析と並行して赤外・ラマン分光、NMR測定を行い、従来法による構造解析も行うことで、従来法に対するメリット・デメリットを明確にする。

【期待される成果と意義】

原子レベルで制御されたゼオライト合成手法および、その局所構造の精密解析手法が確立されれば、ゼオライト科学に革新をもたらし、工業的な触媒反応プロセスの飛躍的な効率向上が期待される。さらには、効率的な触媒反応プロセスの構築により、SDGs達成への貢献も見込まれる。また、合成手法や構造情報に関する情報を蓄積することで、ゼオライト・インフォマティクス構築に繋がり、広範な用途への科学的裏付けを与える。次世代の放射光計測・解析技術の確立は、ゼオライト科学に限定的ではなく、幅広い学術分野で、未知とされてきた課題の解決へと貢献できると期待される。

【当該研究課題と関連の深い論文・著書】

- ・ M. Yabushita, A. Muramatsu *et al.*, “Mechanochemical Route for Preparation of MFI-Type Zeolite Containing Highly Dispersed and Small Ce Species and Catalytic Application to Low-Temperature Oxidative Coupling of Methane” *Ind. Eng. Chem. Res.*, **60**, 10101-10111 (2021).
- ・ T. Xiao, M. Yabushita, A. Muramatsu *et al.*, “Organic Structure-Directing Agent-Free Synthesis of Mordenite-Type Zeolites Driven by Al-Rich Amorphous Aluminosilicates” *ACS Omega*, **6**, 5176-5182 (2021).

【ホームページ等】

<http://www2.tagen.tohoku.ac.jp/lab/muramatsu/html/mura@tohoku.ac.jp>



図1 本研究の構想