


液晶をテンプレートとするナノシート合成

基礎工学研究科 物質創成専攻

准教授 内田 幸明


https://researchmap.jp/Yoshiaki_Uchida


研究の概要

液晶を用いた新しいナノシート合成法として内田が提案している「両親媒性相における二次元反応場 (TRAP) 法」により、前例のない非晶質アルミノ珪酸塩ナノシートを合成した。さらに、構造規定剤 (SDA) を用いたドライゲルコンバージョン (DGC) 法により単一種の非晶質アルミノ珪酸塩ナノシートから四種類のゼオライトナノシートに変換することができた。その一つであるCHA型ゼオライトナノシートを触媒とする低密度ポリエチレン (LDPE) のクラッキング試験を行ったところ、従来のCHA型ゼオライト結晶よりも低級オレフィンの比率が向上した。

研究の背景と結果

ナノ構造材料は形状由来の特性を持つ。中でも、ナノシートは非常に薄いため、分散性が高く、ナノサイズ効果を示す一方で、厚さの100倍以上の幅のおかげで扱いやすい。従来よく使われてきたトップダウン的な剥離によるナノシート合成法では、非剥離性材料のナノシートを合成できない。そこで、様々な界面をテンプレートとした異方的な成長によるボトムアップ法が研究されている¹⁾。実用化に向けてスケールアップが可能で、低コストでナノシートのサイズを制御できる合成法が求められている。内田らは、最近、二分子膜を反応場とする材料合成法 (TRAP 法) を開発している^{2,3)}。

本研究では、TRAP法を用いることで非晶質アルミノ珪酸塩ナノシートの合成し、これを前駆体としてドライゲルコンバージョン (DGC) 法により種々のゼオライトナノシートに変換する新しい方法を提案した。同じ非晶質アルミノ珪酸塩を原料にして、四種類のゼオライトナノシートが得られることを確かめた。

まず、イオン性の両親媒性分子のデカン溶液が示すHL相中の親水性TRAPを用いて、非晶質アルミノ珪酸塩ナノシートを合成した。原料はオルト珪酸テトラエチルとアルミニウムイソプロポキシドである。得られた粉末は厚さが 1.96 ± 0.67 nm、横幅が 395 ± 137 nmの非晶質アルミノ珪酸塩ナノシートであった。

次に、非晶質アルミノ珪酸塩ナノシートをSDAの水溶液に浸漬して、乾燥させることでゲルを作製し、160°Cの水蒸気によって結晶化させた。構造規定剤を変えることで、PHI型、CHA型、SOD型、MFI型の四種類のゼオライトナノシートを得ることができた。

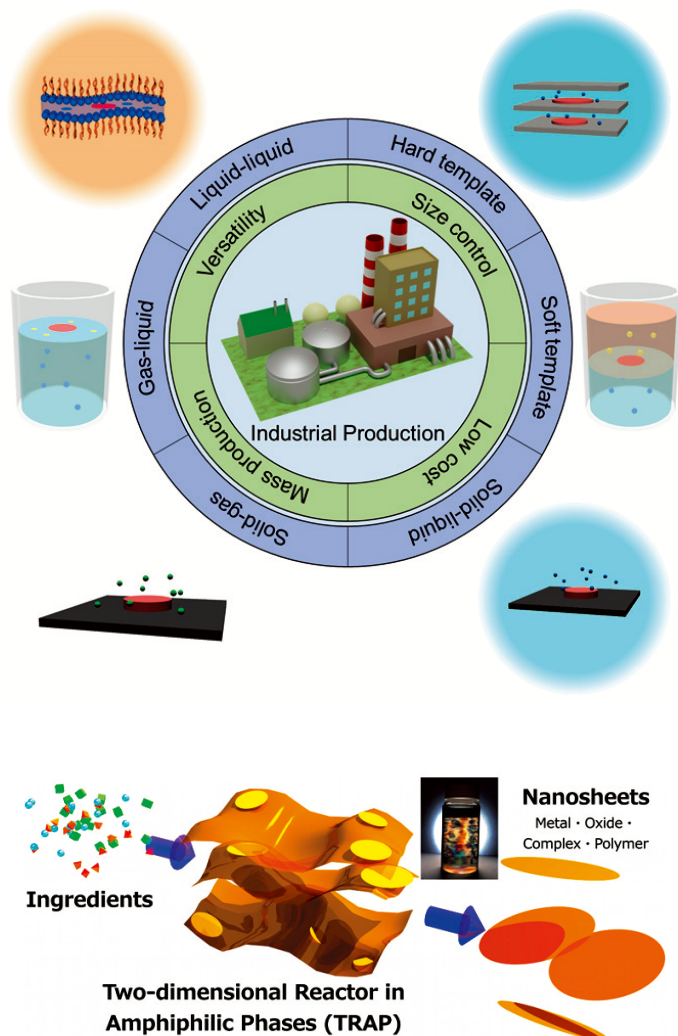
さらに、CHA型ゼオライトナノシートを用いて、低密度ポリエチレン (LDPE) のクラッキング試験を行った。同量の従来のCHA型ゼオライト結晶よりも生成物における低級オレフィンの比率が向上することがわかった。

研究の意義と将来展望

本研究の手法は、多くの種類のゼオライトに適用できる。ゼオライトナノシートは、その厚みと大きな外部表面積から、メタノール-オレフィン触媒、ポリマー分解、分離膜など、様々な用途への大きな可能性を秘めている。

本研究で合成した結晶構造のうち、MFI型とCHA型は触媒としてよく用いられる。MFI型ゼオライトナノシートは第二世代のナノシート合成法でも報告例があるが、CHA型については本研究が初めての報告例である。

自己集合体をテンプレートとしており、利用している両親媒性分子が低コストであるため、スケールアップが容易であることも、この手法の特徴の一つである。



特許 特許第7290230号、特許第6978783号

論文 1) Sasaki, Koki; Uchida, Yoshiaki; Nishiyama, Norikazu. Bottom-up synthesis of nanosheets at various interfaces. ChemPlusChem. 2023, 88 (10), e202300255. doi: 10.1002/cplu.202300255
 2) Sasaki, Koki; Uchida, Yoshiaki; Nishiyama, Norikazu et al. Amorphous aluminosilicate nanosheets as universal precursors for the synthesis of diverse zeolite nanosheets for polymer-cracking reactions. Angewandte Chemie International Edition. 2022, 61 (46), e202213773. doi: 10.1002/anie.202213773
 3) Uchida, Yoshiaki; Nishizawa, Takuma; Nishiyama, Norikazu et al. Nanosheet formation in hyperswollen lyotropic lamellar phases. Journal of the American Chemical Society. 2016, 138 (4), 1103-1105. doi: 10.1021/jacs.5b11256

参考URL <http://www.cheng.es.osaka-u.ac.jp/nishiyamalabo/research/325/2484.html>

キーワード アルミノ珪酸塩、ラメラ相、ナノシート、ゼオライト、触媒