

## 2015A 期 採択長期利用課題の事後評価について - 3 -

公益財団法人高輝度光科学研究センター  
利用推進部

2015A 期に採択された長期利用課題について、2017B 期に 3 年間の実施期間が終了したことを受け、SPRING-8 利用研究課題審査委員会長期利用分科会による事後評価が行われました。

事後評価は、長期利用分科会が実験責任者に対しヒアリングを行った後、評価を行うという形式で実施し、SPRING-8 利用研究課題審査委員会で評価結果を取りまとめますが、同一研究テーマの課題が 2018A 期からの長期利用課題として新たに申請されたため、その面接審査と同時に最終期 (2017B 期) 終了前に当該課題のヒアリングを第 62 回長期利用分科会 (2017 年 12 月 12 日および 15 日開催) において行いました。その後、当該課題の最終期 (2017B 期) が終了し、実験責任者より改めて提出された、全期間の研究結果をまとめた最終版の「長期利用課題終了報告書」およびヒアリングの結果を踏まえ、長期利用分科会による最終的な評価結果がとりまとめられました。

以下に評価を受けた課題の評価結果を示します。研究内容については本誌の「最近の研究から」に実験責任者による紹介記事を掲載しています。

なお、2015A 期に採択された長期利用課題 7 課題のうち 3 課題の評価結果は、「SPRING-8/SACLA 利用者情報」Vol.23 No.3 (2018 年 8 月号) に、もう 1 課題の評価結果は、Vol.23 No.4 (2018 年 11 月号) に掲載済みです。また、残りの 2 課題の評価結果については次号以降に掲載する予定です。

課題名	革新的機能性ゼオライトの設計を目的とした生成メカニズムの時分割原子・ナノスケール解析
実験責任者(所属)	脇原 徹 (東京大学)
採択時課題番号	2015A0115
ビームライン	BL04B2
利用期間/配分総シフト	2015A~2017B/231 シフト

### 〔評価結果〕

本長期利用課題は、石油化学触媒、吸着剤、自動車用排ガス処理、抗菌剤などに用いられるゼオライトの革新的機能創成を目指して、高エネルギー X 線全散乱法によりゼオライトの生成メカニズムを原子・ナノスケールで解明するものである。具体的には、ゼオライト合成原料の結晶化過程の理解、新規反応を実現するゼオライトや高触媒活性・高耐熱水蒸気性を併せ持つゼオライトの自在設計を可能にする基盤技術の確立を研究目的としている。ゼオライトが結晶化する前の前駆体はネットワーク構造を持つ非晶質であり、新規ゼオライトの合成を可能にするにはこの構造を明らかにする必要がある。本課題では、60 keV 以上の高エネルギー X 線を用いた二体分布関数 (PDF) 解析により、従来の手法 (NMR、EXAFS など) では 3 Å 程度までの構造情報しか得ることができないという欠点を克服し、長年の未解明部分であるナノスケールの非晶質前駆体ネットワーク構造の変化過程を明らかにするものである。

本課題の研究において、PDF 解析を多種類のゼオライトに適用し、合成上重要な知見を得ている。例えば、ゼオライト中の Al を酸やスチーミングで除去する過程を PDF 解析することにより、ゼオライト構造を壊すことなく、Si/Al 比を向上させる合成条件を決定している。また、d-PDF (differential PDF) 法を用いることで、シリカ構造中への Hf 導入を確認しながら、原料の状態からヘテロ金属の導入量を増加させることに成功している。そのほか、複数のヘテロ金属の同時導入、炭化モリブデンや ZnPt 合金クラスターのゼオライト細孔中での調整などに、効果的に PDF 解析を応用してきた。さらに、ゼオライトの超高速合成法を開発している。これらの研究をとおして 10 報以上の論文が発表されており、ゼオライトの製造技術の向上に貢献している。

以上のように、本長期利用課題は多くの成果を創出しており、所期の目標を達成しているものと判断できる。今後は、これらの多くの研究成果からゼオライト合成の学理が構築されることを期待する。

[成果リスト]  
(査読付き論文)

- [ 1 ] SPring-8 publication ID = 29615  
Z. Liu *et al.*: “A Top-Down Methodology for Ultrafast Tuning of Nanosized Zeolites” *Chemical Communications* **51** (2015) 12567-12570.
- [ 2 ] SPring-8 publication ID = 32342  
M. Kanezashi *et al.*: “Tailoring the Subnano Silica Structure via Fluorine Doping for Development of Highly Permeable CO<sub>2</sub> Separation Membranes” *ChemNanoMat* **2** (2016) 264-267.
- [ 3 ] SPring-8 publication ID = 32343  
H. Yamada *et al.*: “Downsizing AFX Zeolite Crystals to Nanoscale by a Postmilling Recrystallization Method” *Crystal Growth & Design* **16** (2016) 3389-3394.
- [ 4 ] SPring-8 publication ID = 32344  
T. Ikuno *et al.*: “Structure-Directing Behaviors of Tetraethylammonium Cations toward Zeolite Beta Revealed by the Evolution of Aluminosilicate Species Formed during the Crystallization Process” *Journal of the American Chemical Society* **137** (2015) 14533-14544.
- [ 5 ] SPring-8 publication ID = 34781  
Z. Liu *et al.*: “Continuous Flow Synthesis of ZSM-5 Zeolite on the Order of Seconds” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **113** (2016) 14267-14271.
- [ 6 ] SPring-8 publication ID = 34782  
J. Zhu *et al.*: “Ultrafast Synthesis of High-Silica Erionite Zeolites with Improved Hydrothermal Stability” *Chemical Communications* **53** (2017) 6796-6799.
- [ 7 ] SPring-8 publication ID = 34783  
C. Peng *et al.*: “Preparation of Nanosized SSZ-13 Zeolite with Enhanced Hydrothermal Stability by a

Two-Stage Synthetic Method” *Microporous and Mesoporous Materials* **255** (2018) 192-199.

[ 8 ] SPring-8 publication ID = 34784

M. Kanezashi *et al.*: “Preparation and Gas Permeation Properties of Fluorine-Silica Membranes with Controlled Amorphous Silica Structures: Effect of Fluorine Source and Calcination Temperature on Network Size” *ACS Applied Materials & Interfaces* **9** (2017) 24625-24633.