科学研究費補助金研究成果報告書

平成23年5月31日現在

研究種目:学術創成研究費 研究期間:2005~2009 課題番号:17GS0206

研究課題名(和文) 規則性無機ナノ空間の特性を活かした新しい機能空間化学の開拓 研究課題名(英文) Development of Functional Nanospace Chemistry with Mesoporous

Inorganic Materials

研究代表者

岩本 正和 (IWAMOTO MASAKAZU)

東京工業大学・フロンティア研究機構・教授

研究者番号:10108342

研究成果の概要(和文):

本研究では「ナノ空間でのみ発現する新機能の開拓」を目標に研究を実施した。研究期間中に、規則性ナノ空間物質を触媒とすると、ニッケル担持体上でエチレンやエタノールが選択的にプロピレンに転換できること、銅イオン交換体あるいはチタンイオン交換体上で固体特有の不斉合成反応を実現できること等を明らかにした。また、細孔内へのアゾベンゼンの担持により細孔径を可変化できること等も究明し、未知の機能の発見や新機能の創成を達成した。

研究成果の概要(英文):

Our efforts were devoted to development of new functions or catalyses resulting from nanoporous structure. Ni-MCM-41 was found to catalyze the selective conversion of ethene or ethanol to propene, while Cu-MCM-41 or Ti-MCM-41 was an excellent catalyst for the asymmetric reaction of azo-compounds. Supporting of azobenzene into the pores of silica MCM-41 resulted in change in the pore diameter with the photo-irradiation.

交付決定額

(金額単位:円)

	直接経費	間接経費	合 計
2005 年度	85,100,000	25,530,000	110,630,000
2006 年度	85,300,000	25,590,000	110,890,000
2007 年度	81,500,000	24,450,000	105,950,000
2008 年度	78,800,000	23,640,000	102,440,000
2009 年度	56,900,000	17,070,000	73,970,000
総 計	387,600,000	116,280,000	503,880,000

研究分野:工学

科研費の分科・細目:プロセス工学・触媒・資源化学プロセス

キーワード:ナノ空間物質、シリカメゾ多孔体、イオン交換、バイオエタノール、有機合成

1. 研究開始当初の背景

ナノテクノロジーの多くがナノ粒子の構造・組成・組織を制御し、新機能を発現させているのに対し、本研究ではナノオーダーの規則性空間の機能に焦点を当てている。さらに、従来型のナノ空間化学研究が高表面積や規則性細孔体を単純に利用しているのと異なり、我々は新機能の実現、新しい利用法の開拓に努めた。

研究開始時に明らかにしていたことは以下の

通りである。まず、ほぼ中性のシリカが規則性細孔を形成すると極めて高効率な酸触媒として機能すること、この効果を使うと例えばフリーデルクラフツアシル化反応がカルボン酸によって直接進行すること、ニッケルイオンと組み合わせるとエチレンをプロピレンに転換できること(いずれも夢のグリーンプロセス)を見出していた。さらに、壁イオン交換法あるいはテンプレートイオン交換法を開発し、水中の有害酸素酸イオンの選択的

除去や固体による不斉接触酸化を初めて達成した。後者は長い間その実現が待たれていたものである。また、半導体のバンドギャップ制御にも成功し、化学反応場の外部制御に道を拓いている。

2. 研究の目的

規則性ナノ空間物質は、(1) 壁厚が薄く、ほとんどの構成元素が表面に位置する、(2) 均一な表面を持つ、(3) 1000m²/g(シリカ)に達する極限表面積を有し、細孔径が均一かつ制御可能である等の特徴を有している。本研究では以下の項目を検討することとした。

- (1)規則性ナノ空間の特異性を活かした新しいグリーンプロセスの開拓
- (2)ナノ集積による新しい空間機能/触媒能の創出
- (3)外部刺激応答機能の導入と触媒反応の外部制御

3. 研究の方法

本学術創成研究では、岩本研究室のこれまでの実績をさらに拡張発展させる方向で研究組織を組んだ。具体的には、固体酸機能と対極をなす固体塩基機能に関する検討を尾中教授が、金属イオン担持 MCM-41 系触媒の機序解明を黒田教授と犬丸准教授が、触媒反応の更なる高効率化に関する試みを岡本准教授が、ニッケル以外の活性成分の担持とその機能解明を小松准教授が担当し、全体として規則性ナノ空間物質の特異性を体系的に検討することとした。

本学術創成研究では9名の班員が並列的に研究を行うのではなく、班員の研究を有機的に組み合わせ、一体となって規則性ナノ空間触媒の不思議な触媒能を解明し、さらに応用発展させる研究方策を採っており、チームとして充分に機能したと考えている。

4. 研究成果

(1)ナノ空間の特異性を活かしたグリーンプロセスの開拓

シリカがナノ空間を形成した場合に発現する特異な固体酸機能を種々の有機合成に拡張し、これまでの酸触媒とは異なる反応が進行することを認めた。例えば、向山ーアルドール反応においては、アセタールの方がアルデヒドよりも高い反応性を示すことを見出した。これは、一般的な反応性序列と全く逆である。ディールスアルダー反応ではナノ細孔の効果とAI含有量の効果を識別して測定することに成功した。一方、尾中らは塩基性を示すメゾAI₂O₃を超臨界CO₂(酸性溶媒)中で用いるとティシェンコ反応が50-70%収率で進行することを見出した。

炭素 - 炭素二重結合の酸化的水和では、2-メ チルインデンや 1-アリールシクロへキセンオキシ ドからシスジオールを高収率で得ることができた。 高選択性発現には低極性溶媒が有効で、水の 添加量は少ないほど有利であった。本反応系では置換基の電子供与性/吸引性によらず高いシス選択性が発現した。本反応は種々の反応に拡張でき、例えば求核剤としてアルコールを用いた場合にも高シス選択的付加が進行し、その結果は均一系触媒反応を超えることを見出した。

ナノ細孔内の均一表面を反応場とする不斉固体触媒の実現に挑戦し、Cu-M41 による不斉シクロプロパン化を検討した。ジアゾ化合物によるシクロプロパン化は速やかに進行し、反応系にビスオキサゾリンを加えると、得られた trans-体に 70%程度の不斉誘起が観測された。活性種が液相に溶出しないこと、不斉固体触媒として再使用できることは別途確認した。触媒中に存在する銅量のわずか 1/4 程度(モル比)の修飾剤の添加で充分な ee 値が得られた。また、修飾剤の置換基効果が均一系と不均一系で大きく異なることを見出した。本研究により、固体触媒による不斉合成が現実のものとなり、その不斉発現機構は均一系とは大きく異なっていることが結論された。

(2)ナノ集積による新しい機能・触媒能の創出 我々は以前、壁イオン交換 WIE 法を開発し、 Zr-P 系の複合酸化物多孔体を調製した。本研 究では、Zr-W、Zr-Cr 等の複合酸化物系で高 表面積多孔体を調製できた。

金属イオン担持系での反応は溶液系と気相系で検討した。溶液系では、Cu-M41を触媒としてジアゾ化合物とカルボニル化合物から温和な条件で環状エーテル類が合成できた。均一系のCu(OTf)2は本条件下では生成物を全く与えなかった。また、1,3-ジカルボニル化合物がAl-M41触媒により高収率で合成できることをまず確認し、これをBiginelli反応系に組み込んだ。その結果、先例のない四成分縮合によるジヒドロピリミジノン類合成をAl-M41上で達成できた。活性はSi/Al=30を頂点とする山型を示した。

気相反応系ではNi-M41を中心に検討した。 の触媒上でのエチレン→プロピレン反応は本研 究申請以前に見出していた。本研究では、 UV-VIS、昇温還元、XANES、ニッケルアンミン 錯体吸着法、速度論的検討からNiが八面体配 位をとること、反応はメタセシスを経由して進行し ていることを究明した。本研究者はエチレンの代 わりにバイオエタノールを用いることを着想した。 実際、M41 上でのC2-C4 アルコールの脱水反 応、Ni-M41 上でのエタノール→低級オレフィン はともに 99%超の収率で進行した。驚いたことに 本反応は空間速度 20,000h⁻¹でも収率よく進行 する超高速反応であった。本反応ではエタノー ルの脱水反応、生成したエチレンの二量化、異 性化、メタセシスが進行していると考えている。 本反応系を用いると、バイオエタノールを燃料で はなく高分子化合物原料として利用でき、CO。 を長期間固定できることになる。この点が高く評 価され、本プロセスは平成20年度から経産省、

農水省合同のNEDOプロジェクトに採用された。

(3)外部刺激応答型触媒

酸化物微粒子をナノ多孔体内で調製すると量子サイズ効果によってバンドギャップを可変化できることを利用して酸化チタンや硫化カドミウムを用いない新しい光触媒系の構築を試みた。実際に実験したところ、超微粒子が水中で光溶解を起こし、安定な光触媒系を構築するのは極めて困難であることがわかった。

ジアリールエテン(DE)の光異性化反応の量子 効率向上にシリカメゾ多孔体への担持が極めて 有効であることを見出した(約4倍の高効率化を 達成)。これは細孔内で DE がパラレル構造をと りにくいためである。

次に、アゾベンゼン分子を細孔内に放射状に配置し、光異性化による細孔径可変化の可能性を検討した。p-トリエトキシシリルアゾベンゼンをM41内に担持すると細孔径が可逆的に変化し、その変化量は約1nmであること、アゾベンゼン基の最適表面密度は約0.9個/nm²であることが明らになった。この研究の過程でマロノニトリル系のプローブ分子のUV吸収波長が細孔径によって変化する新事象も見出した。

主な発表論文等 (雑誌論文)(計120件)

- 1. T. Deguchi, M. Iwamoto, Kinetics and Simulation Including Mass-Transfer Processes of Direct H_2O_2 Synthesis from H_2 and O_2 over Pd/C Catalyst in Water Containing H^+ and Br^- Ion", Ind. Eng. Chem.Res., in press. 查読有
- 2. F. Hayashi, <u>M. Iwamoto</u>, Ammonia Synthesis over Rhenium Supported on Mesoporous Silica MCM-41, Micro. Meso. Mater., in press. 査読有
- 3. T. Deguchi, M. Iwamoto, Reaction mechanism of direct H_2O_2 synthesis from H_2 and O_2 over Pd/C catalyst in water with H^+ and Br^- ions, J. Catal., in press. 査読有
- 4. R. Maeda, T. Wada, A. Kusaka, T. Mori, M. Iwamoto, Y. Inoue, Roles of Entropy in Supramolecular Photochirogenesis: Enantiodifferentiating Photoisomerization of Cyclooctenes in Chiral Sensitizer—Immobilized MCM-41 Cavity, Photochem. Photobiol. Sci., in press. 查読有
- 5. T. Haishi, K. Kasai, M. Iwamoto, Fast and Quantitative Dehydration of Lower Alcohols to Corresponding Olefins on Mesoporous Silica Catalyst, Chem. Lett., in press. 查読有
- 6. <u>M. Iwamoto</u>, K. Kasai, T. Haishi, Conversion of Ethanol into Ingredients of Polyolefins and Its Reaction Pathways on Nickel Ion-loaded Mesoporous Silica, ChemSusChem, in press. 查読有
- 7. H. Ishitani, M. Iwamoto, Asymmetric S-O

- Bond Formation by Oxidation, Elsevier, in press. 查読有
- 8. <u>K. Inumaru</u>, K. Nakamura, K. Ooyachi, K. Mizutani, S. Akihara, S. Yamanaka, Preparation of Pd particles coated with mesoporous silica layers, J. Porous Mater., in press. 查読有
- K. Inumaru, A. Anzai, T. Kikudome, M. Harada, H. Sakai, Y. Ide, T. Sano, S. Yamanaka, Molvbdenum cluster halide compound Mo₆Cl₁₂OH₂₂ with six-handed linkage hydrogen bonding, Bull. Chem. Soc. Jpn, in press. 查読有 10. M. Okamoto, Y. Osafune, MFI-type zeolite with a core-shell structure with minimal defects synthesized by crystal overgrowth aluminum-free MFI-type zeolite aluminum-containing zeolite and its catalytic performance, Microporous and Mesoporous Materials, in press. 查読有
- 11. K. Gotoh, T. Kinumoto, E. Fujii, A. Yamamoto, H. Hashimoto, T. Ohkubo, <u>A. Itadani</u>, <u>Y. Kuroda</u>, H. Ishida, Exfoliated graphene sheets decorated with metal / metal oxide nanoparticles, simple preparation from cation exchanged graphite oxide, Carbon, 49, 1118–1125, 2011. 查読有
- 12. J.-C. Wang, Y. Masui, M. Onaka, Direct Synthesis of Nitriles from α -Aryl Alcohols with Trialkylsilyl Cyanide Using Brønsted Acid Montmorillonite Catalysts, ACS Catalysis, 1, 446-454, 2011, 查読有
- 13. F. Hayashi, K. Ishizu, <u>M. Iwamoto</u>, Fast and Almost Complete Nitridation of Mesoporous Silica with Ammonia in a Plug-Flow Reactor, J. Amer. Ceram. Soc., 93, 104–110, 2010. 查読有14. F. Hayashi, K. Ishizu, <u>M. Iwamoto</u>, Effect Pore Structure on the Nitridation of Mesoporous Silica with Ammonia, Eur. J. Inorg. Chem., 15, 2235–2243, 2010. 查読有
- 15. F. Hayashi, <u>M. Iwamoto</u>, Almost Complete Nitridation of Mesoporous Silica to Mesoporous Silicon (Oxy)Nitiride with Ammonia, Adv. Sci. Tech., 68, 159–164, 2010. 查読有
- 16. H. Murata, <u>H. Ishitani</u>, <u>M. Iwamoto</u>, Highly ordered aluminum—planted mesoporous silica as active catalyst for Biginelli reaction and formyl C-H insertion reaction with diazo ester, Physical Chem. Chem. Phys., 12, 14452–14455, 2010. 查読有
- 17. H. Murata, <u>H. Ishitani</u>, <u>M. Iwamoto</u>, Synthesis of Biginelli dihydropyrimidinone derivatives with various Substituents on aluminum-planted mesoporous silica catalyst, Organic & Biomolecular Chemistry, 8, 1202-1211, 2010. 查読有
- 18. D. Minami, T. Ohkubo, <u>Y. Kuroda</u>, K. Sakai, H. Sakai, M. Abe, Structural Optimization of Arranged Carbon Nanotubes for Hydrogen

- Storage by Grand Canonical Monte Carlo Simulation, Int. J. Hydrogen Ener., 35, 12398-12404, 2010. 查読有
- 19. H. Torigoe, T. Mori, K. Fujie, T. Ohkubo, <u>A. Itadani</u>, K. Gotoh, H. Ishida, H. Yamashita, T, Yumura, H. Kobayashi, <u>Y. Kuroda</u>, Direct Information on Structure and Energetic Features of Cu⁺-Xe Species Formed in MFI-Type Zeolite at Room Temperature, J. Phys. Chem. Lett., 1, 2642–2650, 2010. 查読有
- 20. <u>A. Itadani, M. Tanaka</u>, T. Mori, H. Torigoe, H. Kobayashi, <u>Y. Kuroda</u>, Potential for Fixation of N_2 at Room Temperature Utilizing a Copper-Ion-Exchanged MFI-Type Zeolite As an Adsorbent, Evaluation of the Bond Dissociation Energy of Adsorbed N \equiv N and the Bond Strength of the Cu † -N † N Species, J. Phys. Chem. Letters, 1, 2385–2390, 2010. 查読有
- 21. <u>A. Itadani</u>, T. Yumura, T. Ohkubo, H. Kobayashi, <u>Y. Kuroda</u>, Existence of dual species composed of Cu^+ in CuMFI being bridged by C_2H_2 , Phys. Chem. Chem. Phys., 12, 6455-6465, 2010. 查読有
- 22. T. Yumura, S. Hasegawa, A. Itadani, H. Kobayashi, Y. Kuroda, The Variety of Carbon-Metal Bonds inside Cu-ZSM-5 Zeolites, A Density Functional Theory Study, Materials, 3, 2516-2535, 2010. 查読有
- 23. T. Yumura, H. Yamashita, H. Torigoe, H. Kobayashi, <u>Y. Kuroda</u>, Site-specific Xe Additions into Cu-ZSM-5 Zeolite, Phys. Chem. Chem. Phys., 12, 2392-2400, 2010. 查読有
- 24. J.-C. Wang, Y. Masui, <u>M. Onaka</u>, Efficient Nucleophilic Substitution of a-Aryl Alcohols with 1,3-Dicarbonyl Compounds Catalyzed by Tin Ion-Exchanged Montmorillonite, Synlett, 2493-2497, 2010. 查読有
- 25. J.-C. Wang, Y. Masui, M. Onaka, Direct Allylation of α -Aryl alcohols with Allyltrimethylsilane Catalyzed by Heterogeneous Tin ion-exchanged Montmorillonite, Tetrahedron Lett., 51, 3300-3303, 2010. 査読 有
- 26. J.-C. Wang, Y. Masui, <u>M. Onaka</u>, Synthesis of a-Aminonitriles from Carbonyl Compounds, Amines and Trimethylsilyl Cyanide, Comparison between Catalyst-free Conditions and the Presence of Tin Ion-exchanged Montmorillonite, Eur. J. Org. Chem., 1763-1771, 2010. 查読有
- 27. <u>T. Komatsu</u>, K. Sou, K. Ozawa, Preparation and catalytic properties of fine particles of Pt-Ge intermetallic compound formed inside the mesopores of MCM-41, J. Mol. Catal. A, Chemical, 319, 71-77, 2010. 查読有 28. <u>K. Inumaru</u>, S. Kakii, H. Yoshida, S. Yamanaka, Molybdenum cluster halide

- compound $Mo_6Cl_{12}OH_{22}$ with six-handed linkage hydrogen bonding, Chem. Lett., 39, 1215-1217, 2010. 査読有
- 29. <u>A. Itadani</u>, H. Sugiyama, <u>M. Tanaka</u>, T. Ohkubo, T. Yumura, H. Kobayashi, <u>Y. Kuroda</u>, Potential for C-H Activation in CH₄ Utilizing a CuMFI-type Zeolite as a Catalyst, J. Phys. Chem. C, 113, 7213-7222, 2009. 查読有
- 30. R. Kumashiro, K. Fujie, A. Kondo, T. Mori, Y. Kuroda, Nagao, Н. Kobayashi, Development of a new analysis method evaluating adsorption energies for the respective ion-exchanged sites on alkali-metal ion-exchanged ZSM-5 utilizing CO as a probe molecule, IR-spectroscopic and calorimetric studies combined with a DFT method, Phys. Chem. Chem. Phys., 11, 5041-5051, 2009. 查 読有
- 31. <u>Y. Kuroda</u>, T. Mori, H. Sugiyama, Y. Uozumi, K. Ikeda, <u>A. Itadani</u>, M. Nagao, On the possibility of AgZSM-5 zeolite being a partial oxidation catalyst for methane, J. Colloid and Interface Sci. 333, 294-299, 2009. 查読有
- 32. T. Yumura, M. Takeuchi, H. Kobayashi, <u>Y. Kuroda</u>, Effects of ZSM-5 Zeolite Confinement on Reaction Intermediates during Dioxygen Activation by Enclosed Dicopper Cations, Inorg. Chem., 48, 508-517,2009. 查読有
- 33. J.-C. Wang, Y. Masui, K. Watanabe, <u>M. Onaka</u>, Highly Efficient Cyanosilylation of Sterically Bulky Ketones Catalyzed by Tin Ion-exchanged Montmorillonite, Adv. Synth. Catal., 351, 553-557, 2009. 查読有
- 34. M. Okamoto, Y. Fukukita, M. Haga, K. Toyofuku, N. Mimura, Effect of addition of alkali metal salts in hydrothermal synthesis and post heat-treatment on porosity of SBA-15, Journal of Porous Materials, 16, 135-140, 2009. 查読有35. T. Yamamoto, S. Mori, T. Shishido, J. Kawai, T. Tanaka, Pore-size dependence of the acidic property of mesoporous silica FSM-16, Topic. Catal., 52, 657-663, 2009. 查読有
- 36. <u>S. Hikichi</u>, H. Okuda, Y. Ohzu, M. Akita, Structural Characterization and Oxidation Activity of a NickellI Alkylperoxo Complex, Angew. Chem. Int. Ed., 48, 188–191, 2009. 查読有
- 37. K. Yamaguchi, K. Inumaru, Y. Oumi, T. S. Yamanaka, Sano, Photocatalytic decomposition of 2-propanol in air by mechanical mixtures of TiO2 crystalline particles silicalite adsorbent, The complete conversion of organic molecules irreversibly adsorbed within zeolitic channels, Micropor. Mesopor. Mater., 117, 350-355, 2009. 查読有 38. S. Takahara, S. Kittaka, T. Mori, Y. Kuroda, T. Takamuku, T. Yamaguchi, Neutron

- Scattering and Dielectric Studies on Dynamics of Methanol and Ethanol Confined in MCM-41, J. Phys. Chem. C, 112, 14385-14393, 2008. 查読有
- 39. T. Mori, <u>A. Itadani</u>, E. Tabuchi, Y. Sogo. R. Kumashiro, M. Nagao, <u>Y. Kuroda</u>, Identification of two types of exchangeable sites for monovalent copper ions exchanged in MFI-type zeolite, Phys. Chem. Chem. Phys., 10, 1203-1212, 2008. 查読有
- 40. <u>T. Komatsu</u>, T. Kishi, T. Gorai, Preparation and catalytic properties of uniform particles of Ni3Ge intermetallic compound formed inside the mesopores of MCM-41,J. Catal., 259, 174-182, 2008. 查読有
- 41. H. Murata, <u>H. Ishitani</u>, <u>M. Iwamoto</u>, Selective synthesis of a-substituted b-keto esters from aldehydes and diazo esters on mesoporous silica catalysts, Tetrahedron Lett., 49, 4788-4791, 2008. 查読有
- 42. <u>H. Ishitani</u>, H. Naito, <u>M. Iwamoto</u>, Friedel-Crafts acylation of anisole with carboxylic anhydrides of large molecular sizes on mesoporous silica catalyst, Catal. Lett., 120, 14–18, 2008. 查読有
- 43. Y. Nagai, <u>T. Yamamoto</u>, T. Tanaka, S. Yoshida, T. Nonaka, T. Okamoto, A. Suda, M. Sugiura, XAFS and XRD Analysis of Ceria-Zirconia Oxygen Storage Promoters for Automotive Catalysts, Topic. Catal., 47, 137-147, 2008. 查読有
- 44. K. Ikeda, Y. Kawamura, <u>T. Yamamoto, M. Iwamoto</u>, Effectiveness of the template-ion exchange method for appearance of catalytic activity of Ni-MCM-41 for the ethene to propene reaction, Catal. Commun., 9, 106-110, 2008. 查読有
- 45. <u>K. Inumaru</u>, T. Kikudome, H. Fukuoka, S. Yamanaka, Reversible emergence of a self-assembled layered structure from three-dimensional isotropic ionic crystal of a cluster compound $4\text{-HNC}_5\text{H}_4\text{OH}_2\text{Mo}_6\text{Cl}_{14}$ driven by absorption of water and alcohols, J. Am. Chem. Soc., 130, 10038–10039, 2008. 查 読有
- 46. <u>A. Itadani</u>, H. Sugiyama, <u>M. Tanaka</u>, T. Mori, M. Nagao, <u>Y. Kuroda</u>, New information related to the adsorption model of N_2 on CuMFI at room temperature, J. Phys. Chem. C, 111, 16701–16705, 2007. 查読有
- 47. A. Itadani, M. Tanaka, Y. Kuroda, M. Nagao, New insight into N_2 adsorption and ion-exchange features of CuMFI with different Si/Al ratios, N. J. Chem., 31, 1681-1690, 2007. 査読有
- 48. <u>A. Itadani, M. Tanaka, T. Mori, M. Nagao,</u> H. Kobayashi, <u>Y. Kuroda,</u> A New Strategy for

- the Improvement of the N_2 Adsorption Properties of Copper Ion-Exchanged MFI-Type Zeolites at Room Temperature, J. Phys. Chem. C: 111, 12011-12023, 2007. 查読有
- 49. T. Yamaguchi, K. Yoshida, P. Smirnov, T. Takamuku, S. Kittaka, S. Takahara, <u>Y. Kuroda</u>, M.-C. Bellissent-Funel, Structure and dynamic properties of liquids confined in MCM-41 mesopores, Eur. Phys. J. Special Topics, 141, 19-27, 2007. 查読有
- 50. D. Kudo, Y. Masui, M. Onaka, An Efficient Heterogeneous Pd Catalyst for the Suzuki Coupling, Pd/Al_2O_3 , Chem. Lett., 36, 918–919, 2007. 査読有
- 51. T. Seki, S. Ikeda, <u>M. Onaka</u>, Unique Property of Active Base Sites on Mesoporous Alumina, Stud. Surf. Sci. Catal., 172, 337-340, 2007. 查読有
- 52. T. Seki, <u>M. Onaka</u>, Elucidation of Basic Properies of Mesoporous Alumina through the Temperature-programmed Desorption of Carbon Dioxide and Heterogeneous Basic Catalysis of Mesoporous Alumina for the Knoevenagel Reaction in Supercritical CO₂, J. Mol. Catal. A. Chemical, 263, 115–120, 2007. 查読有
- 53. <u>T. Tanaka</u>, H. Ogino, <u>M. Iwamoto</u>, Photochange in Pore Diameters of Azobenzene-Planted Mesoporous Silica Materials, Langmuir, 23, 11417-11420, 2007. 查読有
- 54. <u>K. Inumaru</u>, T. Ishihara, Y. Kamiya, T. Okuhara, S. Yamanaka, Water-tolerant, highly active solid acid catalysts composed of Keggin-type polyoxometalate $H_3PW_{12}O_{40}$ immobilized in hydrophobic nanospaces of organo- modified mesoporous silica, Angew. Chem. Int. Ed.,46, 7625-7628, 2007. 査読有
- 55. <u>K. Inumaru</u>, T. Kasahara, K. Yoshikawa, T. Nakano, M. Ikeda, T. Ishihara, S. Yamanaka, Studies in Surface Science and Catalysis, 172, 345–348, 2007. 查読有
- 56. <u>A. Itadani, M. Tanaka</u>, T. Abe, H. Taguchi, M. Nagao, Al-pillared Montmorillonite Clayminerals, Low-Pressure CO Adsorption at Room Temperature, J. Colloid Interface Sci., 313, 747-750, 2007. 查読有
- 57. <u>M. Tanaka</u>, <u>A. Itadani</u>, T. Abe, H. Taguchi, M. Nagao, Observation of Characteristic IR Band Assignable to Dimerized Copper Ions in Montmorillonite, J. Colloid Interface Sci., 308, 285–288, 2007. 查読有
- 58. T. Seki, <u>M. Onaka</u>, Heterogeneous strong base catalysis in supercritical carbon dioxide by mesoporous alumina and sulfated mesoporous alumina, Catal. Surv. Asia, 10, 138–150, 2006. 查読有
- 59. T. Seki, S. Ikeda, M. Onaka, Synthesis of

Sodium-doped Mesoporous Alumina and its Superbase Catalysis for Double Bond Migration of Olefins, Micropor. Mesopor. Mater., 96, 121-126, 2006. 查読有

60. T. Seki, T. Nakajo, <u>M. Onaka</u>, The Tishchenko Reaction, A Classic and Practical Tool for Ester Synthesis, Chem. Lett., 35, 824-829, 2006. 查読有

61. T. Seki, <u>M. Onaka</u>, Sulfated Mesoporous Alumina, A Highly Effective Solid Strong Base Catalyst for the Tishchenko Reaction in Supercritical Carbon Dioxide, J. Phys. Chem. B, 110, 1240-1248, 2006. 查読有

62. S. Kittaka, T. Iwashita, A. Serizawa, M. Kuranishi, S. Takahara, Y. Kuroda, T. Mori, T. Yamaguchi, Low Temperature Properties of Acetonitrile Confined in MCM-41, J. Phys. Chem. B, 109, 23162-23169, 2005. 查読有63. A. Itadani, Y. Kuroda, M. Tanaka, M. Nagao, Unambiguous evidence supporting the decomposition reaction of NO on two types of monovalent copper—ion in CuZSM—5 zeolite, Microporous Mesoporous Mater., 86, 159-165, 2005. 查読有

64. S. Takahara, S. Kittaka, T. Mori, <u>Y. Kuroda</u>, T. Yamaguchi, M.-C. Bellissent-Funel, Neutron Scattering Study on Dynamics of Water Molecules Confined in MCM-41, Adsorption, 11, 479-484, 2005. 查読有

65. H. Okada, N. Nakajima, <u>T. Tanaka</u>, <u>M. Iwamoto</u>, Improvement in Photocyclization Efficiency of Diaryl Ethenes by Adjusting Pore Size of Mesoporous Silica, Angew. Chem. Int. Ed., 44, 7233-7236, 2005. 查読有

[学会発表] (計 250件)

1. <u>岩本正和、エチレン</u>/プロピレン転換からバイオマスリファイナリーへ、グリーンサステイナブルケミストリーシンポジウム、2011年6月2日、早稲田大学国際会議場【基調講演】

2. <u>M. Iwamoto</u>, Conversion of Bioethanol to Lower Olefins on Nickel Ion-loaded Mesoporous Silica Catalysts, Inter. Sympo. Catal., Univ. of Sydney, April 15-17, 2009 (Plenary lecture).

〔図書〕(計13件)

<u>岩本正和</u>監修,エヌ・ティー・エス,触媒調製ハンドブック,2011,pp.1-702

[産業財産権]

○出願状況 計14件

名称:オレフィン製造用触媒およびオレフィンの製造方法

発明者: <u>岩本正和</u>, 鈴木哲生, 大橋洋 他 権利者: 東京工業大学, 住友化学, 出光興産 種類:特許

番号:特願 2010-273663 出願年月日:2010/12/08 国内外の別:国内

○取得状況 計2件

名称:複合酸化物多孔体の製造方法

発明者:<u>岩本正和</u>,<u>山本孝</u> 権利者:東京工業大学

種類:特許

番号:特許 4665164 取得年月日:2010/01/21 国内外の別:国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩本 正和 (IWAMOTO MASAKAZU) 東京工業大学・フロンティア研究機構・教授

研究者番号:10108342

(2) 研究分担者

黒田 泰重 (KURODA YASUSHIGE)

岡山大学・自然科学研究科・教授

研究者番号:40116455

尾中 篤 (ONAKA MAKOTO)

東京大学・総合文化研究科・教授

研究者番号:10144122

小松 隆之 (KOMATSU TAKAYUKI) 東京工業大学・理工学研究科・教授

研究者番号: 40186797 犬丸 啓 (INUMARU KEI)

広島大学・理工学研究科・教授

研究者番号:80270891

引地 史郎 (HIKICHI SHIRO)

神奈川大学・工学部・教授

研究者番号:10282857

岡本 昌樹 (OKAMOTO MASAKI)

東京工業大学・理工学研究科・准教授

研究者番号:10262263

山本 孝 (YAMAMOTO TAKASHI)

徳島大学・総合科学部・准教授

研究者番号:70361756

石谷 暖郎 (ISHITANI HARUROU)

東京工業大学・資源化学研究所・講師

研究者番号:50302607

板谷 篤司 (ITADANI ATSUSHI)

岡山大学・自然科学研究科・特任助教

研究者番号:60379708

田中 敏弘 (TANAKA TOSHIHIRO)

三井化学・研究員 研究者番号:20361777