

## 研究課題別研究評価

1. 研究課題名: Molecuics を実現する空間の形状制御

2. 研究者名: 大久保達也

3. 研究の狙い:

階層は異なるが、電子や光子を操作する「場」とそれに基づく「手法」が発明されると、それに対応する学問領域  $○○○○○ics$  が誕生し、その成果は我々の社会に大きな影響を及ぼして来た。これに学び、分子一つ一つを操作し、集積させ、その結果として反応や機能を制御するためには、「場」としての分子サイズの空間とそのネットワークが必要なのではないかと考えた。本研究では、分子サイズの空間とそのネットワークの形の制御に主眼をおいて研究を進め、新領域 *Molecuics* 開拓のための基盤をつくることを目的とする。

4. 研究結果及び自己評価:

### 研究結果

本研究は、分子サイズの空間のネットワーク形成、すなわち「形」づくりに関する部分 i) 及び ii) とこれらの空間にイオンや分子を集積することにより新規な「はたらき」を創出する部分 iii) より構成される。

- i) 高温高圧水熱育成法により、ミリメートルレベルでソーダライト単結晶を育成する方法を確立した。……論文 1)
- ii) 上述のソーダライト単結晶を基板として、水熱合成法によりカンクリナイトを合成した。試行錯誤により特異な構造体が形成される条件を見いだすことが出来た。詳細な構造解析の結果、本例はゼオライト薄膜のヘテロエピタキシャル成長の最初の例であることを明らかにした。……論文 2)、3)
- iii)ゼオライトの特徴を活かし、その空間中にイオン、分子を集積することにより、最高の量子発光収率で  $Nd^{3+}$  を光らせることに成功した。……論文 4)

### 自己評価

「さきがけ研究」提案時に「分子サイズの空間とそのネットワークの形の制御に主眼をおいて研究を進め、*Molecuics* 実現のための基盤をつくることを目指す」ことを目標とし、具体的に i)センチメートルサイズのゼオライト単結晶の合成、ii)ゼオライト薄膜のエピタキシャル成長による細孔ネットワークの創出、iii)ネットワークの構築 を目的として掲げた。

当初、単結晶育成手法の確立に時間がかかり、センチメートルまで単結晶を育成するには至らなかった。しかし、ミリメートルの結晶を用いれば以後の研究を進める上で問題はないと考え、この課題の検討はその段階で停止した。提案時に目的をミリメートルサイズですべきであったと考えた。エピタキシャル成長に関しては、系統的に条件を探る手法を確立し、カンクリナイトについて当初の計画を実現することができた。合成、評価いずれに関しても、これまでに検討されたことがない、全く初めての系であった。そのため、すべて trial and error により、手法を確立して行かなければならなかったため、かなりの時間を要したが、疑問の余地なき結果を残すことができたと考え。最も単純な0次元のケージ構造と1次元のチャンネル構造の接合例であるが

、将来的な分子サイズの空間のネットワーク構築へ向けた第一歩と位置づけることができる。またネットワーク構築に関しては、2000年11月の研究報告会には間に合わなかったが、この秋冬の検討により、3次元細孔を有するチャバザイトに関して、極めて有望な結果を得ている。現在構造解析を進めている段階である。これが確認できれば、ソーダライト(0次元)—カンクリナイト(1次元)—チャバザイト(3次元)

元)の組み合わせでナノ空間のネットワーク構築が可能になるものとする。当初の予定以外に、イオンと分子の集積による光機能発現の検討を行い、非常に興味深い知見を得ることができた。この成果も、今後につながる結果であるとする。

またさきがけ研究の波及的成果として、「水熱法を用いた  $\text{LiV}_2\text{O}_4$  単結晶の合成と幾何学的フラストレーションによる特異な物性の発現」(**Phys. Rev. Lett.**, vol.85, p.1052, 2000)や「新規ゼオライト構造 GUS-1の合成とその構造解析」(**Chem. Commun.**, p.2263, 2000)などがあげられる。これらの成果は、さきがけ研究での研究基盤がなければ得られなかったものである。

#### 5. 領域総括の見解:

ミリメートルの大きさのソーダライト単結晶を基板としてゼオライト薄膜成長による細孔ネットワークを作成、新しい反応や機能を制御する場を創出した。その実際の成果はこれからであるが、新しい分子反応制御系として大いに期待される。若い世代の化学者の熱い創造精神が伝わってくる。

#### 6. 主な論文等:

- 1) Tsuyoshi Shiraki, Toru Wakihara, Masayoshi Sadakata, Masahiro Yoshimura, and Tatsuya Okubo, Millimeter-sized sodalite single-crystals grown under high-temperature, high-pressure hydrothermal condition, **Microporous and Mesoporous Materials**, in press.
- 2) Tatsuya Okubo, Toru Wakihara, Jacques Plévert, Sankar Nair, Michael Tsapatsis, Yoshifumi Ogawa, Hiroshi Komiyama, Masahiro Yoshimura and Mark E. Davis, Heteroepitaxial connection of zeolites, **Angew. Chem.**, in press.
- 3) Toru Wakihara, Jacques Plévert, Sankar Nair, Michael Tsapatsis, Shigehiro Yamakita, Yoshifumi Ogawa, Hiroshi Komiyama, Masahiro Yoshimura, Mark E. Davis and Tatsuya Okubo, Heteroepitaxial connection of zeolites with different pore structures, submitted to **Stud. Surf, Sci. Catal.**
- 4) Yuji Wada, Tatsuya Okubo, Munenori Ryo, Toru Nakazawa, Yasuchika Hasegawa, Takayuki Kitamura, Shozo Yanagida, Strongest emission of  $\text{Nd}^{3+}$  in organic fluid achieved by encapsulation in cavity of nano-sized zeolite, **J. Am. Chem. Soc.**, 122, 8583 (2000).

#### その他

国際会議 5件

国内会議 招待講演、依頼講演 3件、 その他一般口頭発表 11件