

特集：化学を楽しむ・考える

今回は工学研究院の窪田好浩教授が触媒学会の2023年度学会賞（学術部門）を受賞されましたので、経歴に触れながら研究成果について投稿していただきました。皆様の研究やお仕事の参考にしていただければ幸いです。（会誌グループ）

薬学系からゼオライト触媒研究の世界へ

横浜国立大学大学院工学研究院 教授 窪田好浩

工学研究院機能の創生部門（理工学府 化学・生命系理工学専攻／理工学部 化学・生命系学科 化学EP 担当）の窪田と申します。この度、一般社団法人触媒学会の2023年度学会賞（学術部門）を受賞いたしました。受賞題目は「新型ゼオライト触媒の創製と欠陥制御による高性能化に関する研究」です。これに伴い、横浜工業会事務局からのご依頼で「横浜工業会だより」に寄稿させていただいたところ、国大化学会会長の横山幸男先生の目に留まり、国大化学会誌の特集記事の執筆機会をいただけることになりました。貴重な機会をくださった関係の方々に厚く御礼申し上げます。

私の学位は「博士（薬学）」（1991年以前の「薬学博士」に相当）です。大学教養課程（約1年半）の後、薬学部へ進学しました（当時は4年制でも薬剤師国家試験の受験資格が得られる時代でした）。その進路を選んだ最大の理由は、化学物質の「構造-活性相関」に関心が高かったことです。薬学部の専門科目としては有機化学、物理化学、分析化学、薬理学、生理学、微生物学、免疫学、製剤学などを履修しました。最初の3科目は本学理工学部化学系の専門科目とも共通点があります。（当時は生物系の科目が多くずいぶん悩まされました）。名刺交換の際に、「薬学部出身で無機触媒材料の研究をしているのは何故ですか？」とよく問われます。本稿では誠に勝手ながら、その回答になるような自分自身の研究歴などについて紙面をお借りしてご紹介いたします。とは言え、かつて専攻していた「有機合成化学」という分野自体は、理学部・工学部・理工学部・農学部・薬学部などに共通して存在する研究領域であり、どの学部であっても学術的な基盤に変わりがないのも事実です。

ここで、現在深く関わっている触媒学会について簡単に説明します。当学会は日本化学連合を構成す



る化学系13学協会の一つであり、設立されたのは1958年です。2008年に50周年、2018年に60周年の記念式典を行いました。通常は毎年2回（春・秋）の学会（触媒討論会）を主催しています。触媒討論会は原則として、春には首都圏か京阪神で、秋にはそれ以外の地方で開催されます。その一環として2024年3月には、第133回触媒討論会が本学にて開催され、全国から多くの参加者をお迎えしました。その際、触媒学会で活躍中の本学教員（稲垣 怜史教授、高垣 敦教授、本倉 健教授、山口 佳隆教授、吉武 英昭教授、竹歳 絢子助教、長谷川 慎吾助教；以上全員が工学研究院所属）とともに現地実行委員会を結成し、私が実行委員長を務めました。そして有難いことに、メンバー間の息の合った連携のおかげで成功裏に終えることができました。懇親会で梅原 出 学長にスピーチをいただいたことや、本学のご出身で国際的な知名度が極めて高い東大卓越教授・相田 卓三 先生にご講演いただいたことは大変光栄でした。当学会の表彰式が春の討論会場における恒例行事となっていることから、私自身はホームグラウンドである本学キャンパスで表彰されることとなりました。これは個人的には幸運なことでした。（実行委員長であったことと今回の受賞との間に関連は全くありません。）

さて、冒頭付近で述べたことのつづきですが、私

自身は学生時代に東大大学院 薬学系研究科で古賀憲司 教授、富岡 清 助教授（当時）によるご指導の下、医薬品の合成につながるような有機合成化学の研究を卒業研究以降学位取得までずっと行っており、時々触媒を使用する場面が有りはしましたが、触媒学会との縁はまだありませんでした。1992年に通産省工業技術院の化技研（後の物質研、産総研）に入所し、主要な触媒材料であるゼオライトと出会いました。（ゼオライトについては2024年5月に出版された教科書¹⁾をご参照いただければ幸いです。）この頃から少しずつ触媒学会の人脈づくりが始まりました。当時、国内ではゼオライトのユーザーは増加傾向ではあったものの、ゼオライト合成を手掛ける研究者は限られていました。自分のバックグラウンドがゼオライトの合成に活かせるのではないかという思いを持ったのは、東北大学（当時）の寺崎 治 先生（ストックホルム大学名誉教授）からのアドバイスがきっかけでした。先生との雑談の中で、「誰もやっていないことに挑戦し、オリジナリティの高い研究成果をあげたい」と私が発言したことを先生は覚えてくださり、早速米国 Chevron 社の Stacey I. Zones 博士の論文のコピーを送っていただきました。それから間もなく、私が上記の古賀研究室でキラルな物質の研究をしていた事を重視したカリフォルニア工科大学（Caltech）の Mark E. Davis 教授から、客員研究員（ポスドク相当）のオファーをいただき、1994年9月～1995年12月の間、ロサンゼルス郊外のパサデナで研究を行う機会を得ました。Davis 先生だけでなく、上記の Zones 博士にも大変お世話になりました。この時に学んだゼオライト合成研究の進め方や得られた人脈は、今でも諸活動の拠り所となっています。

帰国後まもなく、1996年7月から岐阜大学工学部・杉 義弘 教授の研究室でゼオライト合成の研究を始めました。他にも並行して様々なテーマを扱っていましたが、自分の「顔」づくりとしてゼオライト合成は重要な研究対象だったと思います。寝ても覚めても粉末 X 線回折図にとらめっこし、新規ゼオライト GUS-1 (Gifu University molecular sieve No. 1) を見つけたのもこの頃です。新規なゼオライト骨格に対しては、希望の物質名をつけるとともに、国際ゼオライト学会のデータベースに登録する三文字コードを選ぶ特権が得られます。この時は他の例にも倣って GON という三文字コード（由来は GUS-One）を希望し、2001年に承認されました。日本の研究機関名が由来となったゼオライトとしては初めての例です。

その後2004年にご縁があり、横浜国立大学に8月に移ってまいりました。半年ほど辰巳 敬 教授とともに辰巳・窪田研究室を運営しましたが、2005年4月に辰巳先生は東京工業大学へ転出されました。しかしその後も辰巳先生の研究グループとは切磋琢磨しながらも協力し合い、ゼオライト触媒に関する研究をそれぞれ推進しました。私としては、「MSE という三文字コードを持つゼオライト（図1）が優れた機能を発現するはず」という読みがあり、横浜国立大では2005年度から本格的に検討を始めました²⁾。その年にB4学生だった小山啓人君がその後もとても良くやってくれました³⁾。粉末 X 線回折によるゼオライトの構造解析では国内第一人者である産総研・池田 拓史 博士との協力体制もこの頃から今に至るまで続いています。2008年1月から学際プロジェクト研究センター（IRC）の特任教員（助教）として上述の稲垣 怜史 先生（現・工学研究院教授）が合流されたこともあり、MSE 型ゼオライト触媒に関する研究は順調に進みました^{4, 5)}。当初の期待どおりに、MSE 型ゼオライトは多くの優れた触媒性能を発揮し続けています。この研究は今でも継続中であり、昨年度には新たなブレイクスルーがありました。今年度はさらなる飛躍の年となりそうです。

MSE 型ゼオライトの合成研究の途中で、思わぬ成果が得られました。私自身、GUS-1以来二度目の経験となる「新規骨格ゼオライト」が得られたのです。最初に合成に成功したのは学生の中澤直人君です。そして、我々はそのゼオライトを YNU-5 (Yokohama National University No. 5) と命名しました。三文字コードとしては YFI（由来は YNU-Five）を申請し、2018年に承認されました（図2）。日本の研究機関が貢献した新規ゼオライトとしては三例目です。実は、一例目の GUS-1 は一次元の細孔構造しか持たず、化学組成にも制約があったため触媒材料としては不向きでした。YNU-5 は三次元の細孔構造を持つために有用性が格段に高く、また大きい細孔と小さい細孔を併せ持つ特異な骨格構造のゼオライトであるため、優れた機能が期待されます。ゼオライトを水熱合成する際に、まずケイ素とアルミニウムの供給源を吟味して選び、その上で用いる水の量を大胆に減らすという簡便な操作のみで、純粋な YNU-5 の合成が世界で初めて可能となりました^{6, 7)}。細孔構造の特徴は、工業的に有用なモルデナイトとも類似性がありますが、大きい細孔の通路が二次元に交差しているところがモルデナイトとは異なっています。また、大細孔の通路とは交わらない、独立な小細孔通路の存在が確認されています。

YNU-5は、非石油資源から導かれるジメチルエーテル（DME）やメタノールを有用な化成品原料である低級オレフィン類に転換する、いわゆるDTO / MTO 反応に対して優れた触媒性能を示します。低級オレフィンの中で、エチレンの需要は満たされており、需要が増加している低級オレフィン類はプロピレンやブテンです。同反応に対して有用とされる既存の「小細孔」ゼオライト触媒と比較して、上記プロピレン・ブテンの収率が1.2倍以上の高水準であり、選択的な製造の必要性が特に高いプロピレンと、需要が満たされているエチレンとの比（P/E比）は、10倍以上に向上しました。これは、YNU-5が「小細孔」に加えて「大細孔」の長所を併せ持つことの現れと考えられます。なお、YNU-5は高い熱安定性と耐久性を備えており⁸⁾、これが触媒材料としての最大の強みです。

以上述べてきた一連の研究成果（Caltech→岐阜大→横浜国大で得たもの）が（本稿に記載できなかったものも含めて）総合的に認められ、今回の触媒学会賞の受賞につながりました。本稿で名前を挙げさせていただいた皆様を含め、多くの方々に助けていただきました。この場を借りて全ての方に感謝の意を表します。横浜国立大学のreputation向上に少しでも貢献できたことが個人として大変喜ばしいことであります。今後も本学および国大化学会の発展につながるような研究成果をあげるよう努力していく所存です。

参考文献

- 1) 辰巳 敬, 大久保 達也, 窪田 好浩, 脇原 徹 編, ゼオライトの基礎と応用, 2024年5月22日発行, 講談社, ISBN978-4-06-535773-6
- 2) 窪田好浩, 稲垣怜史, 触媒, Vol. 51, No. 4, 2009, pp. 304-309.
- 3) Y. Koyama, T. Ikeda, T. Tatsumi, Y. Kubota, Angew. Chem. Int. Ed. 2008, 47, 1042-1046.
- 4) M. Sasaki, Y. Sato, Y. Tsuboi, S. Inagaki, Y. Kubota, ACS Catal. 2014, 4, 2653-2657.
- 5) 窪田好浩, 稲垣怜史, ゼオライト, Vol. 31, No. 4, 2014, pp. 131-142.
- 6) N. Nakazawa, T. Ikeda, N. Hiyoshi, Y. Yoshida, Q. Han, S. Inagaki, Y. Kubota, J. Am. Chem. Soc. 2017, 139, 7989-7997.
- 7) 窪田好浩, 稲垣怜史, 中澤直人, 触媒, Vol. 60, No. 5, 2018, pp. 247-252.
- 8) 窪田好浩, 稲垣怜史, 中澤直人, ゼオライト, Vol. 36, No. 4, 2019, pp. 115-124.

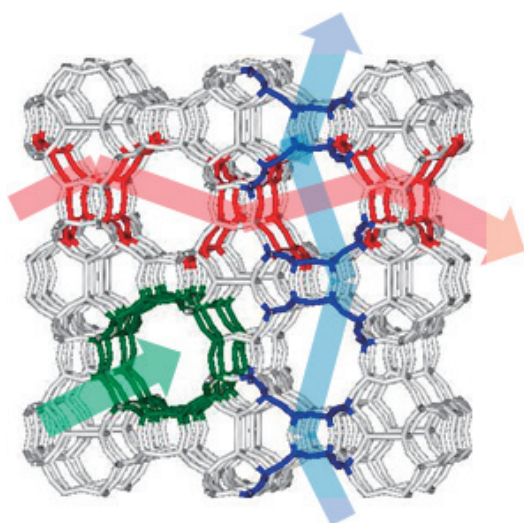


図1 MCM-68（MSE骨格）を[001]方向から見た模式図。矢印は細孔の方向を示す。

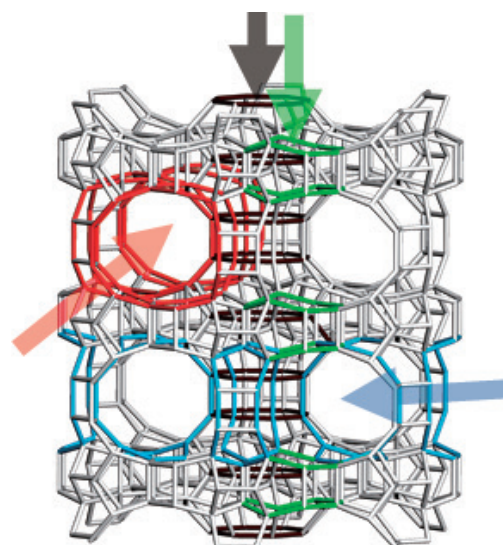


図2 YNU-5（YFI骨格）を[110]方向から見た模式図。矢印は細孔の方向を示す。