

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7622932号
(P7622932)

(45)発行日 令和7年1月28日(2025.1.28)

(24)登録日 令和7年1月20日(2025.1.20)

(51)国際特許分類

F I

B 0 1 J 29/035 (2006.01)

B 0 1 J 29/035 M

C 0 1 B 37/02 (2006.01)

C 0 1 B 37/02

請求項の数 18 (全37頁)

(21)出願番号	特願2019-521318(P2019-521318)	(73)特許権者	504173471
(86)(22)出願日	平成30年5月31日(2018.5.31)		国立大学法人北海道大学
(86)国際出願番号	PCT/JP2018/021078		北海道札幌市北区北8条西5丁目
(87)国際公開番号	WO2018/221690	(73)特許権者	000005290
(87)国際公開日	平成30年12月6日(2018.12.6)		古河電気工業株式会社
審査請求日	令和3年5月7日(2021.5.7)		東京都千代田区大手町二丁目6番4号
審判番号	不服2023-7207(P2023-7207/J1)	(74)代理人	100114890
審判請求日	令和5年5月1日(2023.5.1)		弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラ
(31)優先権主張番号	特願2017-108583(P2017-108583)		インハルト
(32)優先日	平成29年5月31日(2017.5.31)	(74)代理人	100116403
(33)優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)		弁理士 前川 純一
		(74)代理人	100162880
			弁理士 上島 類
		(72)発明者	増田 隆夫
			北海道札幌市北区北8条西5丁目 国立
			最終頁に続く

(54)【発明の名称】 機能性構造体及び機能性構造体の製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

ゼオライト型化合物で構成される多孔質構造の骨格体と、
前記骨格体に内在する少なくとも1つの金属酸化物微粒子と、
を備え、

前記骨格体が、互いに連通する通路を有し、

前記通路が、前記ゼオライト型化合物の骨格構造によって画定される一次元孔、二次元孔及び三次元孔のうちのいずれかと、前記一次元孔、前記二次元孔及び前記三次元孔のうちのいずれとも異なる拡張部とを有し、

前記金属酸化物微粒子が、少なくとも前記拡張部に包接されて存在しており、

前記金属酸化物微粒子の平均粒径が、前記通路の平均内径よりも大きく、且つ前記拡張部の内径以下であり、ここで、前記通路の平均内径は、前記一次元孔、前記二次元孔及び前記三次元孔のうちのいずれかを構成する孔の短径及び長径の平均値から算出される機能性構造体であり、

前記機能性構造体が、規則性メソ細孔物質である前駆体材料（A）に金属含有溶液が含ま浸されてなる前駆体材料（B）が焼成された前駆体材料（C）と構造規定剤とが混合された状態で水熱処理されたものである、機能性構造体。

【請求項2】

前記拡張部は、前記一次元孔、前記二次元孔及び前記三次元孔のうちのいずれかを構成する複数の孔同士を連通している、請求項1に記載の機能性構造体。

【請求項 3】

前記金属酸化物微粒子は、触媒物質であり、

前記骨格体は、前記少なくとも1つの触媒物質を担持する担体であることを特徴とする、請求項1又は2に記載の機能性構造体。

【請求項 4】

前記金属酸化物微粒子の金属元素（M）が、前記機能性構造体に対して0.5～2.5質量%で含有されていることを特徴とする、請求項1～3のいずれか1項に記載の機能性構造体。

【請求項 5】

前記金属酸化物微粒子の平均粒径が、0.1 nm～50 nmであることを特徴とする、請求項1～4のいずれか1項に記載の機能性構造体。

10

【請求項 6】

前記金属酸化物微粒子の平均粒径が、0.5 nm～14.0 nmであることを特徴とする、請求項1～5のいずれか1項に記載の機能性構造体。

【請求項 7】

前記通路の平均内径に対する前記金属酸化物微粒子の平均粒径の割合が、1.1～500であることを特徴とする、請求項1～6のいずれか1項に記載の機能性構造体。

【請求項 8】

前記通路の平均内径に対する前記金属酸化物微粒子の平均粒径の割合が、1.1～36であることを特徴とする、請求項7に記載の機能性構造体。

20

【請求項 9】

前記通路の平均内径に対する前記金属酸化物微粒子の平均粒径の割合が、1.7～4.5であることを特徴とする、請求項8に記載の機能性構造体。

【請求項 10】

前記通路の平均内径は、0.1 nm～1.5 nmであり、

前記拡径部の内径は、0.5 nm～50 nmであることを特徴とする、請求項1～9のいずれか1項に記載の機能性構造体。

【請求項 11】

前記骨格体の外表面に保持された少なくとも1つの金属酸化物微粒子を更に備えることを特徴とする、請求項1～10のいずれか1項に記載の機能性構造体。

30

【請求項 12】

前記骨格体に内在する前記少なくとも1つの金属酸化物微粒子の含有量が、前記骨格体の外表面に保持された前記少なくとも1つの他の金属酸化物微粒子の含有量よりも多いことを特徴とする、請求項11に記載の機能性構造体。

【請求項 13】

前記ゼオライト型化合物は、ケイ酸塩化合物であることを特徴とする、請求項1～12のいずれか1項に記載の機能性構造体。

【請求項 14】

ゼオライト型化合物で構成される多孔質構造の骨格体を得るための規則性メソ細孔物質である前駆体材料（A）に金属含有溶液が含浸された前駆体材料（B）を焼成する焼成工程と、

40

前記前駆体材料（B）を焼成して得られた前駆体材料（C）と構造規定剤とを混合して水熱処理する水熱処理工程と、

を有することを特徴とする請求項1～13のいずれか1項に記載の機能性構造体の製造方法。

【請求項 15】

前記焼成工程の前に、非イオン性界面活性剤を、前記前駆体材料（A）に対して50～500質量%添加することを特徴とする、請求項14に記載の機能性構造体の製造方法。

【請求項 16】

前記焼成工程の前に、前記前駆体材料（A）に前記金属含有溶液を複数回に分けて添加

50

することで、前記前駆体材料（Ａ）に前記金属含有溶液を含浸させることを特徴とする、請求項 14 又は 15 に記載の機能性構造体の製造方法。

【請求項 17】

前記焼成工程の前に前記前駆体材料（Ａ）に前記金属含有溶液を含浸させる際に、前記前駆体材料（Ａ）に添加する前記金属含有溶液の添加量を、前記前駆体材料（Ａ）に添加する前記金属含有溶液中に含まれる金属元素（Ｍ）に対する、前記前駆体材料（Ａ）を構成するケイ素（Ｓｉ）の比（原子数比 $S i / M$ ）に換算して、10～1000 となるように調整することを特徴とする、請求項 14～16 のいずれか 1 項に記載の機能性構造体の製造方法。

【請求項 18】

前記水熱処理工程が塩基性雰囲気下で行われることを特徴とする、請求項 14 に記載の機能性構造体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、多孔質構造の骨格体と機能性物質とを備える機能性構造体及び機能性構造体の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

石油コンビナートの製油所では、原油から、ナフサと呼ばれる石油化学原料や、重油、軽油、灯油、ガソリン、ＬＰガス等の各種燃料が製造されている。原油は、上記の石油化学原料や各種燃料の他、様々な不純物が混ざり合った混合物であるため、原油に含まれる各成分を蒸留、分離する工程が必要となる。

【0003】

そこで石油精製プロセスでは、各成分の沸点差を利用し、常圧蒸留装置における塔内の棚段で原油を加熱して成分毎に分離し、分離後の各物質を濃縮している。これにより、ＬＰガス、ナフサ等の低沸点物質が常圧蒸留装置の上部棚段で取り出されると共に、重油等の高沸点物質が常圧蒸留装置の底部から取り出される。そして、分離、濃縮された各物質に脱硫等の二次処理を施すことにより、各種燃料製品が製造される。

【0004】

一般に、石油改質用触媒は、上記石油精製プロセスにおいて低沸点のナフサ等を効率良く改質してオクタン価の高いガソリン等を製造するために使用されている。原油中のナフサ留分はそのままではオクタン価が低く、車両を走らせるガソリンとしては不適合であるため、ナフサ留分中のオクタン価の低いパラフィン分およびナフテン分を、石油改質用触媒を用いてオクタン価の高い芳香族分に改質することにより、車両の燃料に適した性状の改質ガソリンを製造している。

【0005】

また、原油の重質化に伴い、重質油を直脱装置、間脱装置などの水素化脱硫装置にて水素化脱硫処理して得られる脱硫重油、脱硫重質軽油等を更に分解して、脱硫ナフサ、脱硫灯油、脱硫軽油等を増産する水素化分解処理が行われている。例えば、常圧蒸留残渣油を水素化分解処理することにより、脱硫灯油留分、脱硫ナフサ留分の得率を増大して脱硫重油を低減し、且つ、その脱硫重油を接触分解装置にてＬＰＧ留分、ＦＣＣガソリン留分、ＬＣＯ留分を生産することによって残渣油を低減し、軽質油留分を増大させる。このとき、代表的なゼオライトである結晶性アルミノシリケート担体からなる触媒や、ゼオライトと多孔性無機酸化物とを特定の割合で含む水素化分解触媒が提案されている。

【0006】

例えば、水素化分解触媒として、Ｙ型ゼオライトからなる担体の表面に、Ｐｄ、Ｐｔ、Ｃｏ、Ｆｅ、Ｃｒ、Ｍｏ、Ｗ及びこれらの混合物から選択される材料からなる金属が沈着されてなる触媒が開示されている（特許文献１）。

【0007】

10

20

30

40

50

また、自動車分野においては、ディーゼルエンジンを搭載した車両の排気ガス用触媒構造体として、基材セラミック表面にセラミック担体を配置し、該セラミック担体に主触媒成分及び助触媒成分の双方を担持してなるセラミック触媒体が提案されている。このセラミック触媒体では、 γ -アルミナからなるセラミック担体の表面に、結晶格子中の格子欠陥等からなる多数の細孔が形成されており、Ce-Zr、Pt等からなる主触媒成分がセラミック担体の表面近傍に直接担持された構成を有している（特許文献2）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【文献】米国特許出願公開第2016／0030934号明細書

10

【文献】米国特許出願公開第2003／0109383号明細書

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

しかしながら、上記のような触媒構造体では、触媒粒子が担体の表面或いは表面近傍に担持されているため、改質処理中に被改質物質等の流体から受ける力や熱などの影響に因って触媒粒子が担体内で移動し、触媒粒子同士の凝集（シンタリング）が発生し易い。触媒粒子同士の凝集が生じると、触媒としての有効表面積が減少することで触媒活性が低下することから寿命が通常よりも短くなるため、触媒構造体自体を短期間で交換・再生しなければならない、交換作業が煩雑であると共に、省資源化を図ることができないという問題がある。また、石油改質用触媒は、通常、常圧蒸留装置の下流側に連結されて石油精製プロセスにおいて連続的に使用されるため、触媒の再活性化技術を適用し難く、仮に再活性化技術を適用できたとしても作業が非常に煩雑となる。また、このような機能の経年的な低下の抑制或いは防止は、触媒分野のみならず様々な技術分野での課題として挙げられており、機能の長期的な維持を図るべく解決策が望まれている。

20

【0010】

本発明の目的は、機能性物質の機能低下を抑制して長寿命化を実現することができ、煩雑な交換作業を要せず、省資源化を図ることができる機能性構造体及び機能性構造体の製造方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

30

【0011】

本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、ゼオライト型化合物で構成される多孔質構造の骨格体と、前記骨格体に内在する少なくとも1つの機能性物質と、を備え、前記骨格体が、互いに連通する通路を有し、前記機能性物質が、前記骨格体の少なくとも前記通路に保持されていることによって、機能性物質の機能低下を抑制し、長寿命化を実現できる機能性構造体が見出され、かかる知見に基づき本発明を完成させるに至った。

【0012】

すなわち、本発明の要旨構成は、以下のとおりである。

〔1〕ゼオライト型化合物で構成される多孔質構造の骨格体と、

40

前記骨格体に内在する少なくとも1つの機能性物質と、
を備え、

前記骨格体が、互いに連通する通路を有し、

前記機能性物質が、前記骨格体の少なくとも前記通路に存在していることを特徴とする機能性構造体。

〔2〕前記通路は、前記ゼオライト型化合物の骨格構造によって画定される一次元孔、二次元孔及び三次元孔のうちのいずれかと、前記一次元孔、前記二次元孔及び前記三次元孔のうちのいずれとも異なる拡張部とを有し、かつ

前記機能性物質が、少なくとも前記拡張部に存在していることを特徴とする、上記〔1〕に記載の機能性構造体。

50

〔３〕前記拡径部は、前記一次元孔、前記二次元孔及び前記三次元孔のうちのいずれかを構成する複数の孔同士を連通している、上記〔２〕に記載の機能性構造体。

〔４〕前記機能性物質は、触媒物質であり、

前記骨格体は、前記少なくとも１つの触媒物質を担持する担体であることを特徴とする、上記〔１〕～〔３〕のいずれかに記載の機能性構造体。

〔５〕前記触媒物質は、金属酸化物微粒子であることを特徴とする、上記〔４〕に記載の機能性構造体。

〔６〕前記金属酸化物微粒子の平均粒径が、前記通路の平均内径よりも大きく、且つ前記拡径部の内径以下であることを特徴とする、上記〔５〕に記載の機能性構造体。

〔７〕前記金属酸化物微粒子の金属元素（Ｍ）が、前記機能性構造体に対して０．５質量％～２．５質量％で含有されていることを特徴とする、上記〔５〕又は〔６〕に記載の機能性構造体。

10

〔８〕前記金属酸化物微粒子の平均粒径が、０．１ｎｍ～５０ｎｍであることを特徴とする、上記〔５〕～〔７〕のいずれかに記載の機能性構造体。

〔９〕前記金属酸化物微粒子の平均粒径が、０．５ｎｍ～１４．０ｎｍであることを特徴とする、上記〔５〕～〔８〕のいずれかに記載の機能性構造体。

〔１０〕前記通路の平均内径に対する前記金属酸化物微粒子の平均粒径の割合が、０．０６～５００であることを特徴とする、上記〔５〕～〔８〕のいずれかに記載の機能性構造体。

〔１１〕前記通路の平均内径に対する前記金属酸化物微粒子の平均粒径の割合が、０．１～３６であることを特徴とする、上記〔１０〕に記載の機能性構造体。

20

〔１２〕前記通路の平均内径に対する前記金属酸化物微粒子の平均粒径の割合が、１．７～４．５であることを特徴とする、上記〔１１〕に記載の機能性構造体。

〔１３〕前記通路の平均内径は、０．１ｎｍ～１．５ｎｍであり、

前記拡径部の内径は、０．５ｎｍ～５０ｎｍであることを特徴とする、上記〔２〕～〔１２〕のいずれかに記載の機能性構造体。

〔１４〕前記骨格体の外表面に保持された少なくとも１つの機能性物質を更に備えることを特徴とする、上記〔１〕～〔１３〕のいずれかに記載の機能性構造体。

〔１５〕前記骨格体に内在する前記少なくとも１つの機能性物質の含有量が、前記骨格体の外表面に保持された前記少なくとも１つの他の機能性物質の含有量よりも多いことを特徴とする、上記〔１４〕に記載の機能性構造体。

30

〔１６〕前記ゼオライト型化合物は、ケイ酸塩化合物であることを特徴とする、上記〔１〕～〔１５〕のいずれかに記載の機能性構造体。

〔１７〕ゼオライト型化合物で構成される多孔質構造の骨格体を得るための前駆体材料（Ａ）に金属含有溶液が含浸された前駆体材料（Ｂ）を焼成する焼成工程と、

前記前駆体材料（Ｂ）を焼成して得られた前駆体材料（Ｃ）を水熱処理する水熱処理工程と、

を有することを特徴とする機能性構造体の製造方法。

〔１８〕前記焼成工程の前に、非イオン性界面活性剤を、前記前駆体材料（Ａ）に対して５０～５００質量％添加することを特徴とする、上記〔１７〕に記載の機能性構造体の製造方法。

40

〔１９〕前記焼成工程の前に、前記前駆体材料（Ａ）に前記金属含有溶液を複数回に分けて添加することで、前記前駆体材料（Ａ）に前記金属含有溶液を含浸させることを特徴とする、上記〔１７〕又は〔１８〕に記載の機能性構造体の製造方法。

〔２０〕前記焼成工程の前に前記前駆体材料（Ａ）に前記金属含有溶液を含浸させる際に、前記前駆体材料（Ａ）に添加する前記金属含有溶液の添加量を、前記前駆体材料（Ａ）に添加する前記金属含有溶液中に含まれる金属元素（Ｍ）に対する、前記前駆体材料（Ａ）を構成するケイ素（Ｓｉ）の比（原子数比Ｓｉ／Ｍ）に換算して、１０～１０００となるように調整することを特徴とする、上記〔１７〕～〔１９〕のいずれかに記載の機能性構造体の製造方法。

50

【２１】前記水熱処理工程において、前記前駆体材料（Ｃ）と構造規定剤とを混合することを特徴とする、上記【１７】に記載の機能性構造体の製造方法。

【２２】前記水熱処理工程が塩基性雰囲気下で行われることを特徴とする、上記【１７】に記載の機能性構造体の製造方法。

【発明の効果】

【００１３】

本発明によれば、機能性物質の機能低下を抑制して長寿命化を実現することができ、煩雑な交換作業を要せず、省資源化を図ることができる機能性構造体を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【００１４】

【図１】図１は、本発明の実施形態に係る機能性構造体の内部構造が分かるように概略的に示したものであって、図１（ａ）は斜視図（一部を横断面で示す。）、図１（ｂ）は部分拡大断面図である。

【図２】図２は、図１の機能性構造体の機能の一例を説明するための部分拡大断面図であり、図２（ａ）は篩機能、図２（ｂ）は触媒機能を説明する図である。

【図３】図３は、図１の機能性構造体の製造方法の一例を示すフローチャートである。

【図４】図４は、図１の機能性構造体の変形例を示す模式図である。

【発明を実施するための形態】

【００１５】

以下、本発明の実施形態を、図面を参照しながら詳細に説明する。

【００１６】

【機能性構造体の構成】

図１は、本発明の実施形態に係る機能性構造体の構成を概略的に示す図であり、（ａ）は斜視図（一部を横断面で示す。）、（ｂ）は部分拡大断面図である。なお、図１における機能性構造体は、その一例を示すものであり、本発明に係る各構成の形状、寸法等は、図１のものに限られないものとする。

【００１７】

図１（ａ）に示されるように、機能性構造体１は、ゼオライト型化合物で構成される多孔質構造の骨格体１０と、該骨格体１０に内在する、少なくとも１つの機能性物質２０とを備える。

【００１８】

機能性物質２０は、単独で、または骨格体１０と協働することで、一又は複数の機能を発揮する物質である。また、上記機能の具体例としては、触媒機能、発光（または蛍光）機能、吸光機能、識別機能等が挙げられる。機能性物質２０は、例えば触媒機能を有する触媒物質であることが好ましい。なお、機能性物質２０が触媒物質であるとき、骨格体１０は、触媒物質を担持する担体である。

【００１９】

機能性構造体１において、複数の機能性物質２０、２０、・・・は、骨格体１０の多孔質構造の内部に包接されている。機能性物質２０の一例である触媒物質は、好ましくは金属酸化物微粒子および金属微粒子の少なくとも一方である。金属酸化物微粒子および金属微粒子については、詳しくは後述する。また、機能性物質２０は、金属酸化物や金属の合金、またはこれらの複合材料を含む粒子であってもよい。

【００２０】

骨格体１０は、多孔質構造であり、図１（ｂ）に示すように、好適には複数の孔１１ａ、１１ａ、・・・が形成されることにより、互いに連通する通路１１を有する。ここで機能性物質２０は、骨格体１０の少なくとも通路１１に存在しており、好ましくは骨格体１０の少なくとも通路１１に保持されている。

【００２１】

このような構成により、骨格体１０内での機能性物質２０の移動が規制され、機能性物

10

20

30

40

50

質 20、20 同士の凝集が有効に防止されている。その結果、機能性物質 20 としての有効表面積の減少を効果的に抑制することができ、機能性物質 20 の機能は長期にわたって持続する。すなわち、機能性構造体 1 によれば、機能性物質 20 の凝集による機能の低下を抑制でき、機能性構造体 1 としての長寿命化を図ることができる。また、機能性構造体 1 の長寿命化により、機能性構造体 1 の交換頻度を低減でき、使用済みの機能性構造体 1 の廃棄量を大幅に低減することができ、省資源化を図ることができる。

【0022】

通常、機能性構造体を、流体（例えば、重質油や、NO_x等の改質ガスなど）の中で用いる場合、流体から外力を受ける可能性がある。この場合、機能性物質が、骨格体 10 の外表面に付着状態で保持されているだけであると、流体からの外力の影響で骨格体 10 の外表面から離脱しやすいという問題がある。これに対し、機能性構造体 1 では、機能性物質 20 は骨格体 10 の少なくとも通路 11 に保持されているため、流体による外力の影響を受けたとしても、骨格体 10 から機能性物質 20 が離脱しにくい。すなわち、機能性構造体 1 が流体内にある場合、流体は骨格体 10 の孔 11a から、通路 11 内に流入するため、通路 11 内を流れる流体の速さは、流路抵抗（摩擦力）により、骨格体 10 の外表面を流れる流体の速さに比べて、遅くなると考えられる。このような流路抵抗の影響により、通路 11 内に保持された機能性物質 20 が流体から受ける圧力は、骨格体 10 の外部において機能性物質が流体から受ける圧力に比べて低くなる。そのため、骨格体 11 に内在する機能性物質 20 が離脱することを効果的に抑制でき、機能性物質 20 の機能を長期的に安定して維持することが可能となる。なお、上記のような流路抵抗は、骨格体 10 の通路 11 が、曲がりや分岐を複数有し、骨格体 10 の内部がより複雑で三次元的な立体構造となっているほど、大きくなると考えられる。

【0023】

また、通路 11 は、ゼオライト型化合物の骨格構造によって画定される一次元孔、二次元孔及び三次元孔のうちのいずれかと、上記一次元孔、上記二次元孔及び上記三次元孔のうちのいずれとも異なる拡張部 12 とを有していることが好ましく、このとき、機能性物質 20 は、少なくとも拡張部 12 に存在していることが好ましく、少なくとも拡張部 12 に包接されていることがより好ましい。ここでいう一次元孔とは、一次元チャンネルを形成しているトンネル型またはケージ型の孔、もしくは複数の一次元チャンネルを形成しているトンネル型またはケージ型の複数の孔（複数の一次元チャンネル）を指す。また、二次元孔とは、複数の一次元チャンネルが二次元的に連結された二次元チャンネルを指し、三次元孔とは、複数の一次元チャンネルが三次元的に連結された三次元チャンネルを指す。

これにより、機能性物質 20 の骨格体 10 内での移動がさらに規制され、機能性物質 20 の離脱や、機能性物質 20、20 同士の凝集をさらに有効に防止することができる。包接とは、機能性物質 20 が骨格体 10 に内包されている状態を指す。このとき機能性物質 20 と骨格体 10 とは、必ずしも直接的に互いが接触している必要はなく、機能性物質 20 と骨格体 10 との間に他の物質（例えば、界面活性剤等）が介在した状態で、機能性物質 20 が骨格体 10 に間接的に保持されていてもよい。

【0024】

図 1（b）では機能性物質 20 が拡張部 12 に包接されている場合を示しているが、この構成だけには限定されず、機能性物質 20 は、その一部が拡張部 12 の外側にはみ出した状態で通路 11 に存在していてもよい。また、機能性物質 20 は、拡張部 12 以外の通路 11 の部分（例えば通路 11 の内壁部分）に部分的に埋設され、または固着等によって保持されていてもよい。

また、拡張部 12 は、上記一次元孔、上記二次元孔及び上記三次元孔のうちのいずれかを構成する複数の孔 11a、11a 同士を連通しているのが好ましい。これにより、骨格体 10 の内部に、一次元孔、二次元孔又は三次元孔とは異なる別途の通路が設けられるので、機能性物質 20 の機能をより発揮させることができる。

【0025】

また、通路 11 は、骨格体 10 の内部に、分岐部または合流部を含んで三次元的に形成

されており、拡張部 12 は、通路 11 の上記分岐部または合流部に設けられるのが好ましい。

【0026】

骨格体 10 に形成された通路 11 の平均内径 D_F は、上記一次元孔、二次元孔及び三次元孔のうちのいずれかを構成する孔 11a の短径及び長径の平均値から算出され、例えば $0.1\text{ nm} \sim 1.5\text{ nm}$ であり、好ましくは $0.5\text{ nm} \sim 0.8\text{ nm}$ である。また、拡張部 12 の内径 D_E は、例えば $0.5\text{ nm} \sim 50\text{ nm}$ であり、好ましくは $1.1\text{ nm} \sim 40\text{ nm}$ 、より好ましくは $1.1\text{ nm} \sim 3.3\text{ nm}$ である。拡張部 12 の内径 D_E は、例えば後述する前駆体材料 (A) の細孔径、及び包接される機能性物質 20 の平均粒径 D_C に依存する。拡張部 12 の内径 D_E は、機能性物質 20 を包接し得る大きさである。

10

【0027】

骨格体 10 は、ゼオライト型化合物で構成される。ゼオライト型化合物としては、例えば、ゼオライト (アルミノケイ酸塩)、陽イオン交換ゼオライト、シリカライト等のケイ酸塩化合物、アルミノホウ酸塩、アルミノヒ酸塩、ゲルマニウム酸塩等のゼオライト類縁化合物、リン酸モリブデン等のリン酸塩系ゼオライト類似物質などが挙げられる。中でも、ゼオライト型化合物はケイ酸塩化合物であることが好ましい。

【0028】

ゼオライト型化合物の骨格構造は、FAU型 (Y型またはX型)、MTW型、MFI型 (ZSM-5)、FER型 (フェリエライト)、LTA型 (A型)、MWW型 (MCM-22)、MOR型 (モルデナイト)、LTL型 (L型)、BEA型 (ベータ型) などの中から選択され、好ましくはMFI型であり、より好ましくはZSM-5である。ゼオライト型化合物には、各骨格構造に応じた孔径を有する孔が複数形成されており、例えばMFI型の最大孔径は 0.636 nm ($6.36\text{ \AA}$)、平均孔径 0.560 nm ($5.60\text{ \AA}$) である。

20

【0029】

以下、機能性物質 20 が金属酸化物微粒子および金属微粒子の少なくとも一方 (以下、総称して「微粒子」ということがある。) である場合について詳しく説明する。

【0030】

機能性物質 20 が上記微粒子である場合、微粒子 20 は一次粒子である場合と、一次粒子が凝集して形成した二次粒子である場合とがあるが、微粒子 20 の平均粒径 D_C は、好ましくは通路 11 の平均内径 D_F よりも大きく、且つ拡張部 12 の内径 D_E 以下である ($D_F < D_C \leq D_E$)。このような微粒子 20 は、通路 11 内では、好適には拡張部 12 に包接されており、骨格体 10 内での微粒子 20 の移動が規制される。よって、微粒子 20 が流体から外力を受けた場合であっても、骨格体 10 内での微粒子 20 の移動が抑制され、骨格体 10 の通路 11 に分散配置された拡張部 12、12、... のそれぞれに包接された微粒子 20、20、... 同士が接触するのを有効に防止することができる。

30

【0031】

機能性物質 20 が金属酸化物微粒子である場合には、金属酸化物微粒子 20 の平均粒径 D_C は、一次粒子および二次粒子のいずれの場合も、好ましくは $0.1\text{ nm} \sim 50\text{ nm}$ であり、より好ましくは 0.1 nm 以上 30 nm 未満であり、さらに好ましくは $0.5\text{ nm} \sim 14.0\text{ nm}$ 、特に好ましくは $1.0\text{ nm} \sim 3.3\text{ nm}$ である。また、通路 11 の平均内径 D_F に対する金属酸化物微粒子 20 の平均粒径 D_C の割合 (D_C/D_F) は、好ましくは $0.06 \sim 500$ であり、より好ましくは $0.1 \sim 36$ であり、更に好ましくは $1.1 \sim 36$ であり、特に好ましくは $1.7 \sim 4.5$ である。

40

また、機能性物質 20 が金属酸化物微粒子である場合、金属酸化物微粒子の金属元素 (M) は、機能性構造体 1 に対して $0.5 \sim 2.5$ 質量% で含有されているのが好ましく、機能性構造体 1 に対して $0.5 \sim 1.5$ 質量% で含有されているのがより好ましい。例えば、金属元素 (M) が Co である場合、Co 元素の含有量 (質量%) は、 $\{(\text{Co 元素の質量}) / (\text{機能性構造体 1 の全元素の質量})\} \times 100$ で表される。

【0032】

50

上記金属酸化物微粒子は、金属酸化物で構成されていればよく、例えば、単一の金属酸化物で構成されていてもよく、あるいは2種以上の金属酸化物の混合物で構成されていてもよい。なお、本明細書において、金属酸化物微粒子を構成する（材質としての）「金属酸化物」は、1種の金属元素（M）を含む酸化物と、2種以上の金属元素（M）を含む複合酸化物とを含む意味であり、1種以上の金属元素（M）を含む酸化物の総称である。

【0033】

このような金属酸化物としては、例えば酸化コバルト（ CoO_x ）、酸化ニッケル（ NiO_x ）、酸化鉄（ FeO_x ）、酸化銅（ CuO_x ）、酸化ジルコニウム（ ZrO_x ）、酸化セリウム（ CeO_x ）、酸化アルミニウム（ AlO_x ）、酸化ニオブ（ NbO_x ）、酸化チタン（ TiO_x ）、酸化ビスマス（ BiO_x ）、酸化モリブデン（ MoO_x ）、酸化バナジウム（ VO_x ）、酸化クロム（ CrO_x ）等が挙げられ、上記のいずれか1種以上を主成分とすることが好ましい。

【0034】

また、機能性物質20が金属微粒子である場合には、金属微粒子20の平均粒径 D_c は、一次粒子および二次粒子のいずれの場合も、好ましくは0.08～30nmであり、より好ましくは0.08nm以上25nm未満であり、さらに好ましくは0.4nm～11.0nmであり、特に好ましくは0.8～2.7nmである。また、通路11の平均内径 D_f に対する金属微粒子20の平均粒径 D_c の割合（ D_c/D_f ）は、好ましくは0.05～300であり、より好ましくは0.1～30であり、更に好ましくは1.1～30であり、特に好ましくは1.4～3.6である。

機能性物質20が金属微粒子である場合、金属微粒子の金属元素（M）は、機能性構造体1に対して0.5～2.5質量%で含有されているのが好ましく、機能性構造体1に対して0.5～1.5質量%で含有されているのがより好ましい。

【0035】

上記金属微粒子は、酸化されていない金属で構成されていればよく、例えば、単一の金属で構成されていてもよく、あるいは2種以上の金属の混合物で構成されていてもよい。なお、本明細書において、金属微粒子を構成する（材質としての）「金属」は、1種の金属元素（M）を含む単体金属と、2種以上の金属元素（M）を含む金属合金とを含む意味であり、1種以上の金属元素を含む金属の総称である。

【0036】

このような金属としては、例えば白金（Pt）、パラジウム（Pd）、ルテニウム（Ru）、ニッケル（Ni）、コバルト（Co）、モリブデン（Mo）、タングステン（W）、鉄（Fe）、クロム（Cr）、セリウム（Ce）、銅（Cu）、マグネシウム（Mg）、アルミニウム（Al）等が挙げられ、上記のいずれか1種以上を主成分とすることが好ましい。

【0037】

なお、機能性物質20は、耐久性の観点では、金属酸化物微粒子であることが好ましい。

【0038】

また、微粒子20を構成する金属元素（M）に対する、骨格体10を構成するケイ素（Si）の割合（原子数比 Si/M ）は、10～1000であるのが好ましく、50～200であるのがより好ましい。上記割合が1000より大きいと、活性が低いなど、機能性物質としての作用が十分に得られない可能性がある。一方、上記割合が10よりも小さいと、微粒子20の割合が大きくなりすぎて、骨格体10の強度が低下する傾向がある。なお、ここでいう微粒子20は、骨格体10の内部に存在し、または担持された微粒子をいい、骨格体10の外表面に付着した微粒子を含まない。

【0039】

〔機能性構造体の機能〕

機能性構造体1は、上記のとおり、多孔質構造の骨格体10と、骨格体に内在する少なくとも1つの機能性物質20とを備える。機能性構造体1は、骨格体に内在する機能性物質20が流体と接触することにより、機能性物質20に応じた機能を発揮する。具体的に

、機能性構造体1の外表面10aに接触した流体は、外表面10aに形成された孔11aから骨格体10内部に流入して通路11内に誘導され、通路11内を通過して移動し、他の孔11aを通じて機能性構造体1の外部へ出る。流体が通路11内を通過して移動する経路において、通路11に保持された機能性物質20と接触することによって、機能性物質20の機能に応じた反応（例えば、触媒反応）が生じる。また、機能性構造体1は、骨格体が多孔質構造であることにより、分子篩能を有する。

【0040】

まず、機能性構造体1の分子篩能について、図2（a）を用いて、流体がベンゼン、プロピレン及びメシチレンを含む液体である場合を例として説明する。図2（a）に示すように、孔11aの孔径以下、言い換えれば、通路11の内径以下の大きさを有する分子で構成される化合物（例えば、ベンゼン、プロピレン）は、骨格体10内に浸入することができる。一方、孔11aの孔径を超える大きさを有する分子で構成される化合物（例えば、メシチレン）は、骨格体10内へ浸入することができない。このように、流体が複数種類の化合物を含んでいる場合に、骨格体10内に浸入することができない化合物の反応は規制され、骨格体10内に浸入することができる化合物を反応させることができる。

【0041】

反応によって骨格体10内で生成した化合物のうち、孔11aの孔径以下の大きさを有する分子で構成される化合物のみが孔11aを通じて骨格体10の外部へ出ることができ、反応生成物として得られる。一方、孔11aから骨格体10の外部へ出ることができない化合物は、骨格体10の外部へ出ることができる大きさの分子で構成される化合物に変換させれば、骨格体10の外部へ出すことができる。このように、機能性構造体1を用いることにより、特定の反応生成物を選択的に得ることができる。

【0042】

機能性構造体1では、図2（b）に示すように、好適には通路11の拡張部12に機能性物質20が包接されている。機能性物質20が金属酸化物微粒子であるとき、金属酸化物微粒子の平均粒径 D_C が、通路11の平均内径 D_F よりも大きく、拡張部12の内径 D_E よりも小さい場合には（ $D_F < D_C < D_E$ ）、金属酸化物微粒子と拡張部12との間に小通路13が形成される。そこで、図2（b）中の矢印に示すように、小通路13に浸入した流体が金属酸化物微粒子と接触する。各金属酸化物微粒子は、拡張部12に包接されているため、骨格体10内での移動が制限されている。これにより、骨格体10内における金属酸化物微粒子同士の凝集が防止される。その結果、金属酸化物微粒子と流体との大きな接触面積を安定して維持することができる。

【0043】

次に、機能性物質20が触媒機能を有する場合について説明する。具体的に、機能性物質20が酸化鉄（ FeO_x ）微粒子であり、機能性構造体1の骨格体10内に、重質油であるドデシルベンゼンを浸入させた場合を例として説明する。骨格体10内にドデシルベンゼンが浸入すると、下記に示すように、ドデシルベンゼンが、酸化分解反応によって種々のアルコール及びケトンに分解される。さらに、分解物の1つであるケトン（ここではアセトフェノン）から、軽質油であるベンゼンが生成される。これは、機能性物質20が酸化分解反応における触媒として機能することを意味する。このように、機能性構造体1を用いることにより、重質油を軽質油に変換することができる。従来、重質油を軽質油に変換するためには、水素を用いた水素化分解処理が行われていた。これに対して、機能性構造体1を用いれば、水素が不要となる。そのため、水素の供給が難しい地域においても重質油を軽質油に変換するために利用することができる。また、水素が不要となることで、低コスト化を実現でき、これまで十分に利用することができなかった重質油の利用が促進されることが期待できる。

【0044】

10

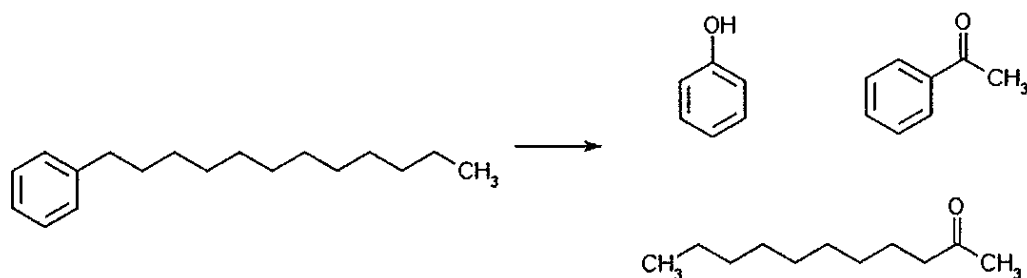
20

30

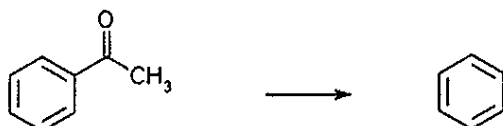
40

50

【化 1】



【化 2】



【0045】

〔機能性構造体の製造方法〕

図3は、図1の機能性構造体1の製造方法を示すフローチャートである。以下、骨格体に内在する機能性物質が金属酸化物微粒子である場合を例に、機能性構造体の製造方法の一例を説明する。

【0046】

(ステップS1：準備工程)

図3に示すように、まず、ゼオライト型化合物で構成される多孔質構造の骨格体を得るための前駆体材料(A)を準備する。前駆体材料(A)は、好ましくは規則性メソ細孔物質であり、機能性構造体の骨格体を構成するゼオライト型化合物の種類(組成)に応じて適宜選択できる。

【0047】

ここで、機能性構造体の骨格体を構成するゼオライト型化合物がケイ酸塩化合物である場合には、規則性メソ細孔物質は、細孔径1～50nmの細孔が1次元、2次元または3次元に均一な大きさかつ規則的に発達したSi-O骨格からなる化合物であることが好ましい。このような規則性メソ細孔物質は、合成条件によって様々な合成物として得られるが、合成物の具体例としては、例えばSBA-1、SBA-15、SBA-16、KIT-6、FSM-16、MCM-41等が挙げられ、中でもMCM-41が好ましい。なお、SBA-1の細孔径は10～30nm、SBA-15の細孔径は6～10nm、SBA-16の細孔径は6nm、KIT-6の細孔径は9nm、FSM-16の細孔径は3～5nm、MCM-41の細孔径は1～10nmである。また、このような規則性メソ細孔物質としては、例えばメソポーラスシリカ、メソポーラスアルミノシリケート、メソポーラスメタロシリケート等が挙げられる。

【0048】

前駆体材料(A)は、市販品および合成品のいずれであってもよい。前駆体材料(A)を合成する場合には、公知の規則性メソ細孔物質の合成方法により行うことができる。例えば、前駆体材料(A)の構成元素を含有する原料と、前駆体材料(A)の構造を規定するための鑄型剤を含む混合溶液を調製し、必要に応じてpHを調整して、水熱処理(水熱合成)を行う。その後、水熱処理により得られた沈殿物(生成物)を回収(例えば、ろ別)し、必要に応じて洗浄および乾燥し、さらに焼成することで、粉末状の規則性メソ細孔物質である前駆体材料(A)が得られる。ここで、混合溶液の溶媒としては、例えば水、またはアルコール等の有機溶媒、若しくはこれらの混合溶媒等を用いることができる。また、原料は、骨格体の種類に応じて選択されるが、例えばテトラエトキシシラン(TEOS)等のシリカ剤、フュームドシリカ、石英砂等が挙げられる。また、鑄型剤としては

、各種界面活性剤、ブロックコポリマー等を用いることができ、規則性メソ細孔物質の合成物の種類に応じて選択することが好ましく、例えばMCM-41を作製する場合にはヘキサデシルトリメチルアンモニウムブロミド等の界面活性剤が好適である。水熱処理は、例えば、密閉容器内で、80～800℃、5時間～240時間、0～2000kPaの処理条件で行うことができる。焼成処理は、例えば、空气中で、350～850℃、2時間～30時間の処理条件で行うことができる。

【0049】

(ステップS2：含浸工程)

次に、準備した前駆体材料(A)に、金属含有溶液を含浸させ、前駆体材料(B)を得る。

【0050】

金属含有溶液は、機能性構造体の金属酸化物微粒子を構成する金属元素(M)に対応する金属成分(例えば、金属イオン)を含有する溶液であればよく、例えば、溶媒に、金属元素(M)を含有する金属塩を溶解させることにより調製できる。このような金属塩としては、例えば、塩化物、水酸化物、酸化物、硫酸塩、硝酸塩等の金属塩が挙げられ、中でも硝酸塩が好ましい。溶媒としては、例えば水、またはアルコール等の有機溶媒、若しくはこれらの混合溶媒等を用いることができる。

【0051】

前駆体材料(A)に金属含有溶液を含浸させる方法は、特に限定されないが、例えば、後述する焼成工程の前に、粉末状の前駆体材料(A)を攪拌しながら、金属含有溶液を複数回に分けて少量ずつ添加することが好ましい。また、前駆体材料(A)の細孔内部に金属含有溶液がより浸入し易くなる観点から、前駆体材料(A)に、金属含有溶液を添加する前に予め、添加剤として界面活性剤を添加しておくことが好ましい。このような添加剤は、前駆体材料(A)の外表面を被覆する働きがあり、その後に添加される金属含有溶液が前駆体材料(A)の外表面に付着することを抑制し、金属含有溶液が前駆体材料(A)の細孔内部により浸入し易くなると考えられる。

【0052】

このような添加剤としては、例えばポリオキシエチレンオレイルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル等の非イオン性界面活性剤が挙げられる。これらの界面活性剤は、分子サイズが大きく前駆体材料(A)の細孔内部には浸入できないため、細孔の内部に付着することは無く、金属含有溶液が細孔内部に浸入することを妨げないと考えられる。非イオン性界面活性剤の添加方法としては、例えば、後述する焼成工程の前に、非イオン性界面活性剤を、前駆体材料(A)に対して50～500質量%添加するのが好ましい。非イオン性界面活性剤の前駆体材料(A)に対する添加量が50質量%未満であると上記の抑制作用が発現し難く、非イオン性界面活性剤を前駆体材料(A)に対して500質量%よりも多く添加すると粘度が上がりすぎるので好ましくない。よって、非イオン性界面活性剤の前駆体材料(A)に対する添加量を上記範囲内の値とする。

【0053】

また、前駆体材料(A)に添加する金属含有溶液の添加量は、前駆体材料(A)に含浸させる金属含有溶液中に含まれる金属元素(M)の量(すなわち、前駆体材料(B)に内在させる金属元素(M)の量)を考慮して、適宜調整することが好ましい。例えば、後述する焼成工程の前に、前駆体材料(A)に添加する金属含有溶液の添加量を、前駆体材料(A)に添加する金属含有溶液中に含まれる金属元素(M)に対する、前駆体材料(A)を構成するケイ素(Si)の比(原子数比Si/M)に換算して、10～1000となるように調整することが好ましく、50～200となるように調整することがより好ましい。例えば、前駆体材料(A)に金属含有溶液を添加する前に、添加剤として界面活性剤を前駆体材料(A)に添加した場合、前駆体材料(A)に添加する金属含有溶液の添加量を、原子数比Si/Mに換算して50～200とすることで、金属酸化物微粒子の金属元素(M)を、機能性構造体に対して0.5～2.5質量%で含有させることができる。前駆

10

20

30

40

50

体材料（Ｂ）の状態、その細孔内部に存在する金属元素（Ｍ）の量は、金属含有溶液の金属濃度や、上記添加剤の有無、その他温度や圧力等の諸条件が同じであれば、前駆体材料（Ａ）に添加する金属含有溶液の添加量に概ね比例する。また、前駆体材料（Ｂ）に内在する金属元素（Ｍ）の量は、機能性構造体の骨格体に内在する金属酸化物微粒子を構成する金属元素の量と比例関係にある。したがって、前駆体材料（Ａ）に添加する金属含有溶液の添加量を上記範囲に制御することにより、前駆体材料（Ａ）の細孔内部に金属含有溶液を十分に含浸させることができ、ひいては、機能性構造体の骨格体に内在させる金属酸化物微粒子の量を調整することができる。

【００５４】

前駆体材料（Ａ）に金属含有溶液を含浸させた後は、必要に応じて、洗浄処理を行ってもよい。洗浄溶液として、水、またはアルコール等の有機溶媒、若しくはこれらの混合溶液を用いることができる。また、前駆体材料（Ａ）に金属含有溶液を含浸させ、必要に応じて洗浄処理を行った後、さらに乾燥処理を施すことが好ましい。乾燥処理としては、一晚程度の自然乾燥や、１５０℃以下の高温乾燥が挙げられる。なお、金属含有溶液に含まれる水分や、洗浄溶液の水分が、前駆体材料（Ａ）に多く残った状態で、後述の焼成処理を行うと、前駆体材料（Ａ）の規則性メソ細孔物質としての骨格構造が壊れる恐れがあるので、十分に乾燥するのが好ましい。

【００５５】

（ステップＳ３：焼成工程）

次に、ゼオライト型化合物で構成される多孔質構造の骨格体を得るための前駆体材料（Ａ）に金属含有溶液が含浸された前駆体材料（Ｂ）を焼成して、前駆体材料（Ｃ）を得る。

【００５６】

焼成処理は、例えば、空気中で、３５０～８５０℃、２時間～３０時間の処理条件で行うことが好ましい。このような焼成処理により、規則性メソ細孔物質の孔内に含浸された金属成分が結晶成長して、孔内で金属酸化物微粒子が形成される。

【００５７】

（ステップＳ４：水熱処理工程）

次いで、前駆体材料（Ｃ）と構造規定剤とを混合した混合溶液を調製し、前記前駆体材料（Ｂ）を焼成して得られた前駆体材料（Ｃ）を水熱処理して、機能性構造体を得る。

【００５８】

構造規定剤は、機能性構造体の骨格体の骨格構造を規定するための鋳型剤であり、例えば界面活性剤を用いることができる。構造規定剤は、機能性構造体の骨格体の骨格構造に応じて選択することが好ましく、例えばテトラメチルアンモニウムブロミド（ＴＭＡＢｒ）、テトラエチルアンモニウムブロミド（ＴＥＡＢｒ）、テトラプロピルアンモニウムブロミド（ＴＰＡＢｒ）等の界面活性剤が好適である。

【００５９】

前駆体材料（Ｃ）と構造規定剤との混合は、本水熱処理工程時に行ってもよいし、水熱処理工程の前に行ってもよい。また、上記混合溶液の調製方法は、特に限定されず、前駆体材料（Ｃ）と、構造規定剤と、溶媒とを同時に混合してもよいし、溶媒に前駆体材料（Ｃ）と構造規定剤とをそれぞれ個々の溶液に分散させた状態にした後に、それぞれの分散溶液を混合してもよい。溶媒としては、例えば水、またはアルコール等の有機溶媒、若しくはこれらの混合溶媒等を用いることができる。また、混合溶液は、水熱処理を行う前に、酸または塩基を用いてｐＨを調整しておくことが好ましい。

【００６０】

水熱処理は、公知の方法で行うことができ、例えば、密閉容器内で、８０～８００℃、５時間～２４０時間、０～２０００ｋＰａの処理条件で行うことが好ましい。また、水熱処理は、塩基性雰囲気下で行われることが好ましい。

ここでの反応メカニズムは必ずしも明らかではないが、前駆体材料（Ｃ）を原料として水熱処理を行うことにより、前駆体材料（Ｃ）の規則性メソ細孔物質としての骨格構造は次第に崩れるが、前駆体材料（Ｃ）の細孔内部での金属酸化物微粒子の位置は概ね維持さ

10

20

30

40

50

れたまま、構造規定剤の作用により、機能性構造体の骨格体としての新たな骨格構造（多孔質構造）が形成される。このようにして得られた機能性構造体は、多孔質構造の骨格体と、骨格体に内在する金属酸化物微粒子を備え、さらに骨格体はその多孔質構造により複数の孔が互いに連通した通路を有し、金属酸化物微粒子はその少なくとも一部分が骨格体の通路に存在している。

また、本実施形態では、上記水熱処理工程において、前駆体材料（C）と構造規定剤とを混合した混合溶液を調製して、前駆体材料（C）を水熱処理しているが、これに限らず、前駆体材料（C）と構造規定剤とを混合すること無く、前駆体材料（C）を水熱処理してもよい。

【0061】

水熱処理後に得られる沈殿物（機能性構造体）は、回収（例えば、ろ別）後、必要に応じて洗浄、乾燥および焼成することが好ましい。洗浄溶液としては、水、またはアルコール等の有機溶媒、若しくはこれらの混合溶液を用いることができる。乾燥処理としては、一晚程度の自然乾燥や、150℃以下の高温乾燥が挙げられる。なお、沈殿物に水分が多く残った状態で、焼成処理を行うと、機能性構造体の骨格体としての骨格構造が壊れる恐れがあるので、十分に乾燥するのが好ましい。また、焼成処理は、例えば、空气中で、350～850℃、2時間～30時間の処理条件で行うことができる。このような焼成処理により、機能性構造体に付着していた構造規定剤が焼失する。また、機能性構造体は、使用目的に応じて、回収後の沈殿物を焼成処理することなくそのまま用いることもできる。例えば、機能性構造体の使用環境が、酸化性雰囲気の高湿環境である場合には、使用環境に一定時間晒すことで、構造規定剤は焼失し、焼成処理した場合と同様の機能性構造体を得られるので、そのまま使用することが可能となる。

【0062】

以上、機能性物質が金属酸化物微粒子である場合の機能性構造体の製造方法を例に説明してきたが、機能性物質が金属微粒子である場合も概ね上記と同様に、機能性構造体を作製することができる。例えば、上記のようにして金属酸化物粒子を有する機能性構造体を得た後、水素ガス等の還元ガス雰囲気下で還元処理することで、骨格体に金属微粒子が内在する機能性構造体を得ることができる。この場合、骨格体に内在する金属酸化物微粒子が還元され、金属酸化物微粒子を構成する金属元素（M）に対応した金属微粒子が形成される。あるいは、前駆体材料（A）に含浸させる金属含有溶液に含まれる金属元素（M）を、酸化され難い金属種（例えば、貴金属）とすることにより、焼成工程（ステップS3）にて金属微粒子を結晶成長させることができ、その後に水熱処理を行うことで、骨格体に金属微粒子が内在する機能性構造体を得ることができる。

【0063】

〔機能性構造体1の変形例〕

図4は、図1の機能性構造体1の変形例を示す模式図である。

図1の機能性構造体1は、骨格体10と、骨格体10に内在する機能性物質20とを備える場合を示しているが、この構成だけには限定されず、例えば、図4に示すように、機能性構造体2が、骨格体10の外表面10aに保持された少なくとも1つの機能性物質30を更に備えていてもよい。

【0064】

この機能性物質30は、一又は複数の機能を発揮する物質である。他の機能性物質30が有する機能は、機能性物質20が有する機能と同一であってもよいし、異なってもよい。他の機能性物質30が有する機能の具体例は、機能性物質20について説明したものと同様であり、中でも触媒機能を有することが好ましく、このとき機能性物質30は触媒物質である。また、機能性物質20、30の双方が同一の機能を有する物質である場合、他の機能性物質30の材料は、機能性物質20の材料と同一であってもよいし、異なってもよい。本構成によれば、機能性構造体2に保持された機能性物質の含有量を増大することができ、機能性物質の機能発揮を更に促進することができる。

【0065】

この場合、骨格体 10 に内在する機能性物質 20 の含有量は、骨格体 10 の外表面 10a に保持された他の機能性物質 30 の含有量よりも多いことが好ましい。これにより、骨格体 10 の内部に保持された機能性物質 20 による機能が支配的となり、安定的に機能性物質の機能が発揮される。

【0066】

以上、本発明の実施形態に係る機能性構造体について述べたが、本発明は上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の技術思想に基づいて各種の変形および変更が可能である。

【実施例】

【0067】

(実施例 1～384)

[前駆体材料 (A) の合成]

シリカ剤 (テトラエトキシシラン (TEOS)、和光純薬工業株式会社製) と、鋳型剤としての界面活性剤とを混合した混合水溶液を作製し、適宜 pH 調整を行い、密閉容器内で、80～350℃、100 時間、水熱処理を行った。その後、生成した沈殿物をろ別し、水およびエタノールで洗浄し、さらに 600℃、24 時間、空气中で焼成して、表 1～8 に示される種類および孔径の前駆体材料 (A) を得た。なお、界面活性剤は、前駆体材料 (A) の種類に応じて (「前駆体材料 (A) の種類：界面活性剤」) 以下のものを用いた。

・MCM-41：ヘキサデシルトリメチルアンモニウムブロミド (CTAB) (和光純薬工業株式会社製)

・SBA-1：Pluronic P123 (BASF 社製)

【0068】

[前駆体材料 (B) および (C) の作製]

次に、表 1～8 に示される種類の金属酸化物微粒子を構成する金属元素 (M) に応じて、該金属元素 (M) を含有する金属塩を、水に溶解させて、金属含有水溶液を調製した。なお、金属塩は、金属酸化物微粒子の種類に応じて (「金属酸化物微粒子：金属塩」) 以下のものを用いた。

・ CoO_x ：硝酸コバルト (II) 六水和物 (和光純薬工業株式会社製)

・ NiO_x ：硝酸ニッケル (II) 六水和物 (和光純薬工業株式会社製)

・ FeO_x ：硝酸鉄 (III) 九水和物 (和光純薬工業株式会社製)

・ CuO_x ：硝酸銅 (II) 三水和物 (和光純薬工業株式会社製)

【0069】

次に、粉末状の前駆体材料 (A) に、金属含有水溶液を複数回に分けて少量ずつ添加し、室温 (20℃±10℃) で 12 時間以上乾燥させて、前駆体材料 (B) を得た。

【0070】

なお、表 1～8 に示す添加剤の有無の条件が「有り」の場合は、金属含有水溶液を添加する前の前駆体材料 (A) に対して、添加剤としてのポリオキシエチレン (15) オレイルエーテル (NIKKOL BO-15V、日光ケミカルズ株式会社製) の水溶液を添加する前処理を行い、その後、上記のように金属含有水溶液を添加した。なお、添加剤の有無の条件で「無し」の場合については、上記のような添加剤による前処理は行っていない。

【0071】

また、前駆体材料 (A) に添加する金属含有水溶液の添加量は、該金属含有水溶液中に含まれる金属元素 (M) に対する、前駆体材料 (A) を構成するケイ素 (Si) の比 (原子数比 Si/M) に換算したときの数値が、表 1～8 の値になるように調整した。

【0072】

次に、上記のようにして得られた金属含有水溶液を含浸させた前駆体材料 (B) を、600℃、24 時間、空气中で焼成して、前駆体材料 (C) を得た。

【0073】

[機能性構造体の合成]

10

20

30

40

50

上記のようにして得られた前駆体材料（C）と、表1～8に示す構造規定剤とを混合して混合水溶液を作製し、密閉容器内で、80～350℃、表1～8に示すpHおよび時間の条件で、水熱処理を行った。その後、生成した沈殿物をろ別し、水洗し、100℃で12時間以上乾燥させ、さらに600℃、24時間、空气中で焼成して、表1～8に示す骨格体と機能性物質としての金属酸化物微粒子とを有する機能性構造体を得た（実施例1～384）。

【0074】

（比較例1）

比較例1では、MFI型シリカライトに平均粒径50nm以下の酸化コバルト粉末（II，III）（シグマ アルドリッチ ジャパン合同会社製）を混合し、骨格体としてのシリカライトの外表面に、機能性物質として酸化コバルト微粒子を付着させた機能性構造体を得た。MFI型シリカライトは、金属を添加する工程以外は、実施例52～57と同様の方法で合成した。

【0075】

（比較例2）

比較例2では、酸化コバルト微粒子を付着させる工程を省略したこと以外は、比較例1と同様の方法にてMFI型シリカライトを合成した。

【0076】

（実施例385～768）

実施例385～768は、前駆体材料（A）の合成、並びに前駆体材料（B）および（C）の作製における諸条件を、表9～16のように変化させた以外は、実施例1と同様の方法で前駆体材料（C）を得た。なお、金属含有水溶液を作製する際に用いた金属塩は、金属微粒子の種類に応じて（「金属微粒子：金属塩」）以下のものを用いた。

- ・Co：硝酸コバルト（II）六水和物（和光純薬工業株式会社製）
- ・Ni：硝酸ニッケル（II）六水和物（和光純薬工業株式会社製）
- ・Fe：硝酸鉄（III）九水和物（和光純薬工業株式会社製）
- ・Cu：硝酸銅（II）三水和物（和光純薬工業株式会社製）

【0077】

〔機能性構造体の合成〕

上記のようにして得られた前駆体材料（C）と、表9～16に示す構造規定剤とを混合して混合水溶液を作製し、密閉容器内で、80～350℃、表9～16に示すpHおよび時間の条件で、水熱処理を行った。その後、生成した沈殿物をろ別し、水洗し、100℃で12時間以上乾燥させ、さらに600℃、24時間、空气中で焼成した。その後、焼成物を回収し、水素ガスの流入下で、400℃、350分間、還元処理して、表9～16に示す骨格体と機能性物質としての金属微粒子とを有する機能性構造体を得た（実施例385～768）。

【0078】

〔評価〕

上記実施例の機能性構造体および比較例のシリカライトについて、以下に示す条件で、各種特性評価を行った。

【0079】

〔A〕断面観察

上記実施例の機能性構造体および比較例1の酸化コバルト微粒子付着シリカライトについて、粉碎法にて観察試料を作製し、透過電子顕微鏡（TEM）（TITAN G2、FEI社製）を用いて、断面観察を行った。

その結果、上記実施例の機能性構造体では、シリカライトまたはゼオライトからなる骨格体の内部に機能性物質が内在し、保持されていることが確認された。一方、比較例1のシリカライトでは、機能性物質が骨格体の外表面に付着しているのみで、骨格体の内部には存在していなかった。

また、上記実施例のうち金属酸化物が酸化鉄微粒子（FeO_x）である機能性構造体に

10

20

30

40

50

ついて、FIB（集束イオンビーム）加工により断面を切り出し、SEM（SU8020、日立ハイテクノロジーズ社製）、EDX（X-Max、堀場製作所社製）を用いて断面元素分析を行った。その結果、骨格体内部からFe元素が検出された。

上記TEMとSEM／EDXによる断面観察の結果から、骨格体内部に酸化鉄微粒子が存在していることが確認された。

【0080】

〔B〕骨格体の通路の平均内径および機能性物質の平均粒径

上記評価〔A〕で行った断面観察により撮影したTEM画像にて、骨格体の通路を、任意に500個選択し、それぞれの長径および短径を測定し、その平均値からそれぞれの内径を算出し（ $N=500$ ）、さらに内径の平均値を求めて、骨格体の通路の平均内径 D_F とした。また、機能性物質についても同様に、上記TEM画像から、機能性物質を、任意に500個選択し、それぞれの粒径を測定して（ $N=500$ ）、その平均値を求めて、機能性物質の平均粒径 D_C とした。結果を表1～16に示す。

また、機能性物質の平均粒径及び分散状態を確認するため、SAXS（小角X線散乱）を用いて分析した。SAXSによる測定は、Spring-8のビームラインBL19B2を用いて行った。得られたSAXSデータは、Guinier近似法により球形モデルでフィッティングを行い、粒径を算出した。粒径は、金属酸化物が酸化鉄微粒子である機能性構造体について測定した。また、比較対象として、市販品である酸化鉄微粒子（Wako製）をSEMにて観察、測定した。

この結果、市販品では粒径約50nm～400nmの範囲で様々なサイズの酸化鉄微粒子がランダムに存在しているのに対し、TEM画像から求めた平均粒径が1.2nm～2.0nmの各実施例の機能性構造体では、SAXSの測定結果においても粒径が10nm以下の散乱ピークが検出された。SAXSの測定結果とSEM／EDXによる断面の測定結果から、骨格体内部に、粒径10nm以下の機能性物質が、粒径が揃いかつ非常に高い分散状態で存在していることが分かった。また、実施例385～768の機能性構造体では、400℃以上の還元処理を行っているにもかかわらず、実施例385以降であってかつTEM画像から求めた平均粒径が1.2nm～2.0nmの各実施例では、10nm以下の粒径を維持していた。

【0081】

〔C〕金属含有溶液の添加量と骨格体内部に包接された金属量との関係

原子数比Si／M＝50，100，200，1000（M＝Co、Ni、Fe、Cu）の添加量で、金属酸化物微粒子を骨格体内部に包接させた機能性構造体を作製し、その後、上記添加量で作製された機能性構造体の骨格体内部に包接された金属量（質量％）を測定した。尚、本測定において原子数比Si／M＝100，200，1000の機能性構造体は、それぞれ実施例1～384のうちの原子数比Si／M＝100，200，1000の機能性構造体と同様の方法で金属含有溶液の添加量を調整して作製し、原子数比Si／M＝50の機能性構造体は、金属含有溶液の添加量を異ならせたこと以外は、原子数比Si／M＝100，200，1000の機能性構造体と同様の方法で作製した。

金属量の定量は、ICP（高周波誘導結合プラズマ）単体か、或いはICPとXRF（蛍光X線分析）を組み合わせで行った。XRF（エネルギー分散型蛍光X線分析装置「SEA1200VX」、エスエスアイ・ナノテクノロジー社製）は、真空雰囲気、加速電圧15kV（Crフィルター使用）或いは加速電圧50kV（Pbフィルター使用）の条件で行った。

XRFは、金属の存在量を蛍光強度で算出する方法であり、XRF単体では定量値（質量％換算）を算出できない。そこで、Si／M＝100で金属を添加した機能性構造体の金属量は、ICP分析により定量し、Si／M＝50および100未満で金属を添加した機能性構造体の金属量は、XRF測定結果とICP測定結果を元に算出した。

この結果、少なくとも原子数比Si／Mが50～1000の範囲内で、金属含有溶液の添加量の増加に伴って、機能性構造体に包接された金属量が増大していることが確認された。

【0082】

〔D〕性能評価

上記実施例の機能性構造体および比較例のシリカライトについて、機能性物質（触媒物質）がもつ触媒能（性能）を評価した。結果を表1～16に示す。

【0083】

（1）触媒活性

触媒活性は、以下の条件で評価した。

まず、機能性構造体を、常圧流通式反応装置に0.2g充填し、窒素ガス（N₂）をキャリアガス（5ml/min）とし、400℃、2時間、ブチルベンゼン（重質油のモデル物質）の分解反応を行った。

反応終了後に、回収した生成ガスおよび生成液を、ガスクロマトグラフィー質量分析法（GC/MS）により成分分析した。なお、生成ガスの分析装置には、TRACE 1310 GC（サーモフィッシャーサイエンティフィック株式会社製、検出器：熱伝導度検出器）を用い、生成液の分析装置には、TRACE DSQ（サーモフィッシャーサイエンティフィック株式会社製、検出器：質量検出器、イオン化方法：EI（イオン源温度250℃、MSトランスファーライン温度320℃、検出器：熱伝導度検出器））を用いた。

さらに、上記成分分析の結果に基づき、ブチルベンゼンよりも分子量が小さい化合物（具体的には、ベンゼン、トルエン、エチルベンゼン、スチレン、クメン、メタン、エタン、エチレン、プロパン、プロピレン、ブタン、ブテン等）の収率（mol%）を求めた。上記化合物の収率は、反応開始前のブチルベンゼンの物質質量（mol）に対する、生成液中に含まれるブチルベンゼンよりも分子量が小さい化合物の物質質量の総量（mol）の百分率（mol%）として算出した。

本実施例では、生成液中に含まれるブチルベンゼンよりも分子量が小さい化合物の収率が、40mol%以上である場合を触媒活性（分解能）が優れていると判定して「◎」、25mol%以上40mol%未満である場合を触媒活性が良好であると判定して「○」、10mol%以上25mol%未満である場合を触媒活性が良好ではないものの合格レベル（可）であると判定して「△」、そして10mol%未満である場合を触媒活性が劣る（不可）と判定して「×」とした。

【0084】

（2）耐久性（寿命）

耐久性は、以下の条件で評価した。

まず、上記評価（1）で使用した機能性構造体を回収し、650℃で、12時間加熱して、加熱後の機能性構造体を作製した。次に、得られた加熱後の機能性構造体を用いて、上記評価（1）と同様の方法により、ブチルベンゼン（重質油のモデル物質）の分解反応を行い、さらに上記評価（1）と同様の方法で、生成ガスおよび生成液の成分分析を行った。

得られた分析結果に基づき、上記評価（1）と同様の方法で、ブチルベンゼンよりも分子量が小さい化合物の収率（mol%）を求めた。さらに、加熱前の機能性構造体による上記化合物の収率（上記評価（1）で求めた収率）と比較して、加熱後の機能性構造体による上記化合物の収率が、どの程度維持されているかを比較した。具体的には、加熱前の機能性構造体による上記化合物の収率（上記評価（1）で求めた収率）に対する、上記加熱後の機能性構造体による上記化合物の収率（本評価（2）で求めた収率）の百分率（%）を算出した。

本実施例では、加熱後の機能性構造体による上記化合物の収率（本評価（2）で求めた収率）が、加熱前の機能性構造体による上記化合物の収率（上記評価（1）で求めた収率）に比べて、80%以上維持されている場合を耐久性（耐熱性）が優れていると判定して「◎」、60%以上80%未満維持されている場合を耐久性（耐熱性）が良好であると判定して「○」、40%以上60%未満維持されている場合を耐久性（耐熱性）が良好ではないものの合格レベル（可）であると判定して「△」、そして40%未満に低下している場合を耐久性（耐熱性）が劣る（不可）と判定して「×」とした。

【0085】

比較例 1～2 についても、上記評価（１）および（２）と同様の性能評価を行った。尚、比較例 2 は、骨格体そのものであり、機能性物質は有していない。そのため、上記性能評価では、機能性構造体に替えて、比較例 2 の骨格体のみを充填した。結果を表 8 に示す。

【 0 0 8 6 】

【表 1】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価									
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A)に対する添加		前駆体材料(C)を用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性							
	種類	孔径 (nm)	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比(原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間 (h)	ゼオライト型化合物構造	平均粒径 D _C (nm)	金属酸化物微粒子種類											
実施例1	MCM-41	1.3	有り	1000	TEABr	12	120	FAU	0.74	CoO _x	0.13	0.2	△	△							
実施例2				500							0.40	0.5	△	△							
実施例3				200							0.66	0.9	○	△							
実施例4		2.0		100							1.32	1.8	◎	○							
実施例5											1.98	2.7	◎	○							
実施例6											2.38	3.2	◎	◎							
実施例7											2.64	3.6	◎	◎							
実施例8											3.30	4.5	◎	◎							
実施例9											6.61	8.9	○	◎							
実施例10	SBA-1	13.21									17.9	○	◎								
実施例11		19.82									26.8	△	◎								
実施例12		26.43									35.7	△	◎								
実施例13	MCM-41	1.3	無し	1000							11	72	MTW	0.61	CoO _x	0.13	0.2	△	△		
実施例14				500												0.40	0.5	△	△		
実施例15				200												0.66	0.9	○	△		
実施例16		2.0		100												1.32	1.8	◎	○		
実施例17																1.98	2.7	◎	○		
実施例18																2.38	3.2	○	◎		
実施例19																2.64	3.6	○	◎		
実施例20																3.30	4.5	○	◎		
実施例21																6.61	8.9	△	◎		
実施例22	SBA-1	13.21														17.9	△	◎			
実施例23		19.82														26.8	△	◎			
実施例24		26.43														35.7	△	◎			
実施例25	MCM-41	1.1	有り	1000		11	72	MTW	0.61							CoO _x	0.11	0.2	△	△	
実施例26				500													0.33	0.5	△	△	
実施例27				200													0.54	0.9	○	△	
実施例28		1.6		100													1.09	1.8	◎	○	
実施例29																	1.63	2.7	◎	○	
実施例30																	1.96	3.2	◎	○	
実施例31																	2.18	3.6	◎	◎	
実施例32																	2.72	4.5	◎	◎	
実施例33																	5.45	8.9	○	◎	
実施例34	SBA-1	10.89															17.9	○	◎		
実施例35		16.34															26.8	△	◎		
実施例36		21.79															35.7	△	◎		
実施例37	MCM-41	1.1	無し	1000							11	72	MTW	0.61			CoO _x	0.11	0.2	△	△
実施例38				500														0.33	0.5	△	△
実施例39				200														0.54	0.9	○	△
実施例40		1.6		100														1.09	1.8	◎	○
実施例41																		1.63	2.7	◎	○
実施例42																		1.96	3.2	◎	○
実施例43																		2.18	3.6	○	◎
実施例44																		2.72	4.5	○	◎
実施例45																		5.45	8.9	△	◎
実施例46	SBA-1	10.89																17.9	△	◎	
実施例47		16.34																26.8	△	◎	
実施例48		21.79																35.7	△	◎	

【 0 0 8 7 】

10

20

30

40

50

【表 2】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価		
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A) に対する添加		前駆体材料(C)を 用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性
	種類	孔径	添加剤の有無	金属含有溶 液の添加量 の換算比 (原子数比) Si/M	構造規 定剤の 種類	pH	時間	ゼオライト型化合物	金属酸化物微粒子					
								構造	通路の 平均内径 D _F	種類	平均粒径 D _C			
		(nm)					(h)		(nm)		(nm)			
実施例49	MCM -41	1.0	有り	1000	TPABr	12	72	MFI	0.56	CoO _x	0.10	0.2	△	△
実施例50		1.0		500					0.56		0.30	0.5	△	△
実施例51		1.0		200					0.56		0.50	0.9	○	△
実施例52		1.0		100					0.56		1.00	1.8	◎	○
実施例53		1.5							0.56		1.50	2.7	◎	○
実施例54		1.8							0.56		1.80	3.2	◎	◎
実施例55		2.0							0.56		2.00	3.6	◎	◎
実施例56		2.5							0.56		2.50	4.5	◎	◎
実施例57		5.0							0.56		5.00	8.9	○	◎
実施例58	SBA -1	10.0	無し	100	TMABr	12	120	FER	0.56	10.00	17.9	○	◎	
実施例59		15.0							0.56	15.00	26.8	△	◎	
実施例60		20.0							0.56	20.00	35.7	△	◎	
実施例61	MCM -41	1.0							1000	0.56	0.10	0.2	△	△
実施例62		1.0							500	0.56	0.30	0.5	△	△
実施例63		1.0							200	0.56	0.50	0.9	○	△
実施例64		1.0							100	0.56	1.00	1.8	◎	○
実施例65		1.5								0.56	1.50	2.7	◎	○
実施例66		1.8								0.56	1.80	3.2	○	◎
実施例67		2.0	0.56	2.00	3.6	○	◎							
実施例68		2.5	0.56	2.50	4.5	○	◎							
実施例69		5.0	0.56	5.00	8.9	△	◎							
実施例70	SBA -1	10.0	有り	100	TMABr	12	120	FER	0.56	10.00	17.9	△	◎	
実施例71		15.0							0.56	15.00	26.8	△	◎	
実施例72		20.0							0.56	20.00	35.7	△	◎	
実施例73	MCM -41	1.0							1000	0.57	0.10	0.2	△	△
実施例74		1.0							500	0.57	0.31	0.5	△	△
実施例75		1.0							200	0.57	0.51	0.9	○	△
実施例76		1.0							100	0.57	1.02	1.8	◎	○
実施例77		1.5								0.57	1.53	2.7	◎	○
実施例78		1.8								0.57	1.83	3.2	◎	○
実施例79		2.0	0.57	2.04	3.6	◎	◎							
実施例80		2.5	0.57	2.54	4.5	◎	◎							
実施例81		5.1	0.57	5.09	8.9	○	◎							
実施例82	SBA -1	10.2	無し	100	TMABr	12	120	FER	0.57	10.18	17.9	○	◎	
実施例83		15.3							0.57	15.27	26.8	△	◎	
実施例84		20.4							0.57	20.36	35.7	△	◎	
実施例85	MCM -41	1.0							1000	0.57	0.10	0.2	△	△
実施例86		1.0							500	0.57	0.31	0.5	△	△
実施例87		1.0							200	0.57	0.51	0.9	○	△
実施例88		1.0							100	0.57	1.02	1.8	◎	○
実施例89		1.5								0.57	1.53	2.7	◎	○
実施例90		1.8								0.57	1.83	3.2	◎	○
実施例91		2.0	0.57	2.04	3.6	○	◎							
実施例92		2.5	0.57	2.54	4.5	○	◎							
実施例93		5.1	0.57	5.09	8.9	△	◎							
実施例94	SBA -1	10.2	有り	100	TMABr	12	120	FER	0.57	10.18	17.9	△	◎	
実施例95		15.3							0.57	15.27	26.8	△	◎	
実施例96		20.4							0.57	20.36	35.7	△	◎	

【 0 0 8 8 】

10

20

30

40

50

【表 3】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体					性能評価		
	前駆体材料(A)		前駆体材料(A) に対する添加		前駆体材料(C) を用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性	
	種類	孔径	添加剤 の有無	金属含有溶 液の添加量 の換算比 (原子数比) Si/M	構造規 定剤の 種類	pH	時間	ゼオライト型化合物 構造	通路の 平均内径 D _F	種類	平均粒径 D _C				
															(nm)
実施例97	MCM -41	1.3	有り	1000	TEABr	12	120	FAU	0.74	NiO _x	0.13	0.2	△	△	
実施例98				500							0.40	0.5	△	△	
実施例99				200							0.66	0.9	○	△	
実施例100				100							1.32	1.8	◎	○	
実施例101											1.98	2.7	◎	○	
実施例102											2.38	3.2	◎	◎	
実施例103		2.64									3.6	◎	◎		
実施例104		3.30									4.5	◎	◎		
実施例105		6.61									8.9	○	◎		
実施例106		SBA -1		13.2							13.21	17.9	○	◎	
実施例107	19.8			19.82							26.8	△	◎		
実施例108	26.4			26.43							35.7	△	◎		
実施例109	100		0.13	0.2		△	△								
実施例110			0.40	0.5		△	△								
実施例111			0.66	0.9		○	△								
実施例112			1.32	1.8		◎	○								
実施例113			1.98	2.7		◎	○								
実施例114			2.38	3.2		○	◎								
実施例115	MCM -41	2.0	無し	2.64		3.6	○	◎							
実施例116				3.30		4.5	○	◎							
実施例117				6.61		8.9	△	◎							
実施例118				13.21		17.9	△	◎							
実施例119				19.82		26.8	△	◎							
実施例120				26.43		35.7	△	◎							
実施例121		SBA -1		0.11		0.2	△	△							
実施例122				0.33		0.5	△	△							
実施例123				0.54		0.9	○	△							
実施例124				1.09		1.8	◎	○							
実施例125	MCM -41	1.6		有り		1.63	2.7	◎	○						
実施例126						1.96	3.2	◎	○						
実施例127			2.18			3.6	◎	◎							
実施例128			2.72			4.5	◎	◎							
実施例129			5.45			8.9	○	◎							
実施例130			10.89			17.9	○	◎							
実施例131		16.34	26.8			△	◎								
実施例132		21.79	35.7			△	◎								
実施例133		MCM -41	1.1			無し	0.11	0.2	△		△				
実施例134							0.33	0.5	△		△				
実施例135	0.54						0.9	○	△						
実施例136	100		1.09				1.8	◎	○						
実施例137			1.63	2.7			◎	○							
実施例138			1.96	3.2			◎	○							
実施例139			2.18	3.6			○	◎							
実施例140			2.72	4.5			○	◎							
実施例141			5.45	8.9			△	◎							
実施例142	SBA -1		10.89	17.9			△	◎							
実施例143		16.34	26.8	△			◎								
実施例144		21.79	35.7	△			◎								

【 0 0 8 9 】

10

20

30

40

50

【表 4】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体					性能評価	
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A) に対する添加		前駆体材料(C)を 用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性
	種類	孔径	添加剤の有無	金属含有溶 液の添加量 の換算比 (原子数比) Si/M	構造規 定剤の 種類	pH	時間	ゼオライト型化合物	金属酸化物微粒子					
								構造	通路の 平均内径 D _F	種類	平均粒径 D _C			
		(nm)					(h)		(nm)		(nm)			
実施例145	MCM-41	1.0	有り	1000	TEABr	12	72	MFI	0.56	NiO _x	0.10	0.2	△	△
実施例146		1.0		500					0.56		0.30	0.5	△	△
実施例147		1.0		200					0.56		0.50	0.9	○	△
実施例148		1.0		100					0.56		1.00	1.8	◎	○
実施例149		1.5							0.56		1.5	2.7	◎	○
実施例150		1.8							0.56		1.8	3.2	◎	◎
実施例151		2.0							0.56		2.0	3.6	◎	◎
実施例152		2.5							0.56		2.5	4.5	◎	◎
実施例153		5.0							0.56		5.0	8.9	○	◎
実施例154	SBA-1	10.0	無し	100	0.56	10.0	17.9	○	◎					
実施例155		15.0			0.56	15.0	26.8	△	◎					
実施例156		20.0			0.56	20.0	35.7	△	◎					
実施例157	1.0	1000			0.56	0.10	0.2	△	△					
実施例158	1.0	500			0.56	0.30	0.5	△	△					
実施例159	1.0	200			0.56	0.50	0.9	○	△					
実施例160	MCM-41	1.0			100	0.56	1.0	1.8	◎	○				
実施例161		1.5				0.56	1.5	2.7	◎	○				
実施例162		1.8				0.56	1.8	3.2	○	◎				
実施例163		2.0	0.56	2.0		3.6	○	◎						
実施例164		2.5	0.56	2.5		4.5	○	◎						
実施例165		5.0	0.56	5.0		8.9	△	◎						
実施例166	SBA-1	10.0	100	0.56		10.0	17.9	△	◎					
実施例167		15.0		0.56		15.0	26.8	△	◎					
実施例168		20.0		0.56		20.0	35.7	△	◎					
実施例169	MCM-41	1.0		有り	1000	0.57	NiO _x	0.10	0.2	△	△			
実施例170		1.0			500	0.57		0.31	0.5	△	△			
実施例171		1.0			200	0.57		0.51	0.9	○	△			
実施例172		1.0			100	0.57		1.02	1.8	◎	○			
実施例173		1.5				0.57		1.5	2.7	◎	○			
実施例174		1.8				0.57		1.8	3.2	◎	○			
実施例175		2.0	0.57			2.0		3.6	◎	◎				
実施例176		2.5	0.57			2.5		4.5	◎	◎				
実施例177		5.1	0.57			5.1		8.9	○	◎				
実施例178	SBA-1	10.2	無し	100	0.57	10.2	17.9	○	◎					
実施例179		15.3			0.57	15.3	26.8	△	◎					
実施例180		20.4			0.57	20.4	35.7	△	◎					
実施例181	1.0	1000			0.57	0.10	0.2	△	△					
実施例182	1.0	500			0.57	0.31	0.5	△	△					
実施例183	1.0	200			0.57	0.51	0.9	○	△					
実施例184	MCM-41	1.0			100	0.57	1.0	1.8	◎	○				
実施例185		1.5				0.57	1.5	2.7	◎	○				
実施例186		1.8				0.57	1.8	3.2	◎	○				
実施例187		2.0	0.57	2.0		3.6	○	◎						
実施例188		2.5	0.57	2.5		4.5	○	◎						
実施例189		5.1	0.57	5.1		8.9	△	◎						
実施例190	SBA-1	10.2	無し	100		0.57	10.2	17.9	△	◎				
実施例191		15.3				0.57	15.3	26.8	△	◎				
実施例192		20.4				0.57	20.4	35.7	△	◎				

【0090】

10

20

30

40

50

【表 5】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体					性能評価															
	前駆体材料(A)		前駆体材料(A)に対する添加		前駆体材料(C)を用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性														
	種類	孔径 (nm)	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比(原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間 (h)	ゼオライト型化合物構造	平均内径D _F (nm)	金属酸化物微粒子種類	平均粒径D _C (nm)																	
実施例193	MCM-41	1.3	有り	1000	TEABr	12	120	FAU	0.74	FeO _x	0.13	0.2	△	△														
実施例194				500							0.40	0.5	△	△														
実施例195				200							0.66	0.9	○	△														
実施例196		2.0		100							1.32	1.8	◎	○														
実施例197											1.98	2.7	◎	○														
実施例198											2.38	3.2	◎	◎														
実施例199											2.64	3.6	◎	◎														
実施例200		2.4									3.30	4.5	◎	◎														
実施例201		2.6									6.61	8.9	○	◎														
実施例202	SBA-1	13.2									13.21	17.9	○	◎														
実施例203		19.8									19.82	26.8	△	◎														
実施例204		26.4									26.43	35.7	△	◎														
実施例205	MCM-41	1.3	無し	1000							11	72	MTW	0.61	FeO _x	0.11	0.2	△	△									
実施例206				500												0.40	0.5	△	△									
実施例207				200												0.66	0.9	○	△									
実施例208		2.0		100												1.32	1.8	◎	○									
実施例209																1.98	2.7	◎	○									
実施例210																2.38	3.2	○	◎									
実施例211																2.64	3.6	○	◎									
実施例212		2.4														3.30	4.5	○	◎									
実施例213	SBA-1	2.6														6.61	8.9	△	◎									
実施例214		13.2														13.21	17.9	△	◎									
実施例215		19.8														19.82	26.8	△	◎									
実施例216		26.4														26.43	35.7	△	◎									
実施例217	MCM-41	1.1	有り	1000		11	72	MTW	0.61							FeO _x	0.11	0.2	△	△								
実施例218				500													0.33	0.5	△	△								
実施例219				200													0.54	0.9	○	△								
実施例220		1.6		100													1.09	1.8	◎	○								
実施例221																	1.63	2.7	◎	○								
実施例222																	1.96	3.2	◎	○								
実施例223																	2.18	3.6	◎	◎								
実施例224		2.0															2.72	4.5	◎	◎								
実施例225	SBA-1	2.2															5.45	8.9	○	◎								
実施例226		2.7															10.89	17.9	○	◎								
実施例227		5.4															16.34	26.8	△	◎								
実施例228		10.9															21.79	35.7	△	◎								
実施例229	MCM-41	1.1	無し	1000							11	72	MTW	0.61			FeO _x	0.11	0.2	△	△							
実施例230				500														0.33	0.5	△	△							
実施例231				200														0.54	0.9	○	△							
実施例232		1.6		100														1.09	1.8	◎	○							
実施例233																		1.63	2.7	◎	○							
実施例234																		1.96	3.2	◎	○							
実施例235																		2.18	3.6	○	◎							
実施例236		2.0																2.72	4.5	○	◎							
実施例237	SBA-1	2.2																5.45	8.9	△	◎							
実施例238		2.7																10.89	17.9	△	◎							
実施例239		5.4																16.34	26.8	△	◎							
実施例240		10.9																21.79	35.7	△	◎							

【 0 0 9 1 】

10

20

30

40

50

【表 6】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価		
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A)に対する添加		前駆体材料(C)を用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性
	種類	孔径 (nm)	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比 (原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間 (h)	ゼオライト型化合物	金属酸化物微粒子					
								構造	通路の平均内径 D _F	種類	平均粒径 D _C (nm)			
実施例241	MCM-41	1.0	有り	1000	TPABr	12	72	MFI	0.56	FeO _x	0.10	0.2	△	△
実施例242		1.0		500					0.56		0.30	0.5	△	△
実施例243		1.0		200					0.56		0.50	0.9	○	△
実施例244		1.0		100					0.56		1.00	1.8	◎	○
実施例245		1.5							0.56		1.50	2.7	◎	○
実施例246		1.8							0.56		1.80	3.2	◎	◎
実施例247		2.0							0.56		2.00	3.6	◎	◎
実施例248		2.5							0.56		2.50	4.5	◎	◎
実施例249		5.0							0.56		5.00	8.9	○	◎
実施例250		SBA-1							10.0		0.56	10.00	17.9	○
実施例251	15.0		0.56	15.00	26.8	△	◎							
実施例252	20.0		0.56	20.00	35.7	△	◎							
実施例253	MCM-41	1.0	無し	1000	TPABr	12	72	MFI	0.56	FeO _x	0.10	0.2	△	△
実施例254		1.0		500					0.56		0.30	0.5	△	△
実施例255		1.0		200					0.56		0.50	0.9	○	△
実施例256		1.0		100					0.56		1.00	1.8	◎	○
実施例257		1.5							0.56		1.50	2.7	◎	○
実施例258		1.8							0.56		1.80	3.2	○	◎
実施例259		2.0							0.56		2.00	3.6	○	◎
実施例260		2.5							0.56		2.50	4.5	○	◎
実施例261		5.0							0.56		5.00	8.9	△	◎
実施例262		SBA-1							10.0		0.56	10.00	17.9	△
実施例263	15.0		0.56	15.00	26.8	△	◎							
実施例264	20.0		0.56	20.00	35.7	△	◎							
実施例265	MCM-41	1.0	有り	1000	TMABr	12	120	FER	0.57	FeO _x	0.10	0.2	△	△
実施例266		1.0		500					0.57		0.31	0.5	△	△
実施例267		1.0		200					0.57		0.51	0.9	○	△
実施例268		1.0		100					0.57		1.02	1.8	◎	○
実施例269		1.5							0.57		1.53	2.7	◎	○
実施例270		1.8							0.57		1.83	3.2	◎	○
実施例271		2.0							0.57		2.04	3.6	◎	◎
実施例272		2.5							0.57		2.54	4.5	◎	◎
実施例273		5.1							0.57		5.09	8.9	○	◎
実施例274		SBA-1							10.2		0.57	10.18	17.9	○
実施例275	15.3		0.57	15.27	26.8	△	◎							
実施例276	20.4		0.57	20.36	35.7	△	◎							
実施例277	MCM-41	1.0	無し	1000	TMABr	12	120	FER	0.57	FeO _x	0.10	0.2	△	△
実施例278		1.0		500					0.57		0.31	0.5	△	△
実施例279		1.0		200					0.57		0.51	0.9	○	△
実施例280		1.0		100					0.57		1.02	1.8	◎	○
実施例281		1.5							0.57		1.53	2.7	◎	○
実施例282		1.8							0.57		1.83	3.2	◎	○
実施例283		2.0							0.57		2.04	3.6	○	◎
実施例284		2.5							0.57		2.54	4.5	○	◎
実施例285		5.1							0.57		5.09	8.9	△	◎
実施例286		SBA-1							10.2		0.57	10.18	17.9	△
実施例287	15.3		0.57	15.27	26.8	△	◎							
実施例288	20.4		0.57	20.36	35.7	△	◎							

【 0 0 9 2 】

10

20

30

40

50

【表 7】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価						
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A) に対する添加		前駆体材料(C)を 用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性				
	種類	孔径	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比 (原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間	セオライト型化合物	金属酸化物微粒子	平均粒径 D _C								
											構造				通路の平均内径 D _F	種類	(nm)	
		(nm)					(h)		(nm)									
実施例289	MCM-41	1.3	有り	1000	TEABr	12	120	FAU	0.74	0.13	0.2	△	△					
実施例290				500						0.40	0.5	△	△					
実施例291				200						0.66	0.9	○	△					
実施例292		2.0		100						1.32	1.8	◎	○					
実施例293										1.98	2.7	◎	○					
実施例294										2.38	3.2	◎	◎					
実施例295										2.64	3.6	◎	◎					
実施例296										3.30	4.5	◎	◎					
実施例297										6.61	8.9	○	◎					
実施例298	SBA-1	13.2								13.21	17.9	○	◎					
実施例299		19.8								19.82	26.8	△	◎					
実施例300		26.4								26.43	35.7	△	◎					
実施例301	MCM-41	1.3	無し	1000		CuO _x	11	72	MTW	0.61	0.13	0.2	△	△				
実施例302				500							0.40	0.5	△	△				
実施例303				200							0.66	0.9	○	△				
実施例304		2.0		100							1.32	1.8	◎	○				
実施例305											1.98	2.7	◎	○				
実施例306											2.38	3.2	○	◎				
実施例307											2.64	3.6	○	◎				
実施例308											3.30	4.5	○	◎				
実施例309											6.61	8.9	△	◎				
実施例310	SBA-1	13.2									13.21	17.9	△	◎				
実施例311		19.8									19.82	26.8	△	◎				
実施例312		26.4									26.43	35.7	△	◎				
実施例313	MCM-41	1.1	有り	1000			CuO ₂	11	72		MTW	0.61	0.11	0.2	△	△		
実施例314				500									0.33	0.5	△	△		
実施例315				200									0.54	0.9	○	△		
実施例316		1.6		100									1.09	1.8	◎	○		
実施例317													1.63	2.7	◎	○		
実施例318													1.96	3.2	◎	○		
実施例319													2.18	3.6	◎	◎		
実施例320													2.72	4.5	◎	◎		
実施例321													5.45	8.9	○	◎		
実施例322	SBA-1	10.9											10.89	17.9	○	◎		
実施例323		16.3											16.34	26.8	△	◎		
実施例324		21.8											21.79	35.7	△	◎		
実施例325	MCM-41	1.1	無し	1000				CuO ₂	11		72		MTW	0.61	0.11	0.2	△	△
実施例326				500											0.33	0.5	△	△
実施例327				200											0.54	0.9	○	△
実施例328		1.6		100											1.09	1.8	◎	○
実施例329															1.63	2.7	◎	○
実施例330															1.96	3.2	◎	○
実施例331															2.18	3.6	○	◎
実施例332															2.72	4.5	○	◎
実施例333															5.45	8.9	△	◎
実施例334	SBA-1	10.9													10.89	17.9	△	◎
実施例335		16.3													16.34	26.8	△	◎
実施例336		21.8													21.79	35.7	△	◎

【 0 0 9 3 】

10

20

30

40

50

【表 8】

No.	機能性構造体の製造条件						機能性構造体				性能評価			
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A)に対する添加		前駆体材料(C)を用いた水熱処理条件		骨格体		機能性物質		D _c /D _r	触媒活性	耐久性	
	種類	孔径	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比(原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間	ゼオライト型化合物		金属酸化物微粒子				
								構造	通路の平均内径 D _r	種類				平均粒径 D _c
		(nm)					(h)		(nm)		(nm)			
実施例337	MCM-41	1.0	有り	1000	TPABr	12	72	MFI	0.56	CuO _x	0.10	0.2	△	△
実施例338		1.0		500					0.30		0.5	△	△	
実施例339		1.0		200					0.50		0.9	○	△	
実施例340		1.0		100					1.00		1.8	◎	○	
実施例341		1.5							1.50		2.7	◎	○	
実施例342		1.8							1.80		3.2	◎	◎	
実施例343		2.0							2.00		3.6	◎	◎	
実施例344		2.5							2.50		4.5	◎	◎	
実施例345		5.0							5.00		8.9	○	◎	
実施例346		10.0							10.00		17.9	○	◎	
実施例347	15.0	15.00	26.8						△		◎			
実施例348	20.0	20.00	35.7						△		◎			
実施例349	1.0	1000	0.10	0.2					△		△			
実施例350	1.0	500	0.30	0.5					△		△			
実施例351	1.0	200	0.50	0.9					○		△			
実施例352	1.0	100	1.00	1.8					◎		○			
実施例353	1.5		1.50	2.7					◎		○			
実施例354	1.8		1.80	3.2					○		◎			
実施例355	2.0		2.00	3.6					○		◎			
実施例356	2.5		2.50	4.5					○		◎			
実施例357	5.0		5.00	8.9					△		◎			
実施例358	10.0		10.00	17.9					△		◎			
実施例359	15.0		15.00	26.8					△		◎			
実施例360	20.0		20.00	35.7					△		◎			
実施例361	1.0	1000	0.10	0.2	△	△								
実施例362	1.0	500	0.31	0.5	△	△								
実施例363	1.0	200	0.51	0.9	○	△								
実施例364	1.0	100	1.02	1.8	◎	○								
実施例365	1.5		1.53	2.7	◎	○								
実施例366	1.8		1.83	3.2	◎	○								
実施例367	2.0		2.04	3.6	◎	◎								
実施例368	2.5		2.54	4.5	◎	◎								
実施例369	5.1		5.09	8.9	○	◎								
実施例370	10.2		10.18	17.9	○	◎								
実施例371	15.3		15.27	26.8	△	◎								
実施例372	20.4		20.36	35.7	△	◎								
実施例373	1.0	1000	0.10	0.2	△	△								
実施例374	1.0	500	0.31	0.5	△	△								
実施例375	1.0	200	0.51	0.9	○	△								
実施例376	1.0	100	1.02	1.8	◎	○								
実施例377	1.5		1.53	2.7	◎	○								
実施例378	1.8		1.83	3.2	◎	○								
実施例379	2.0		2.04	3.6	○	◎								
実施例380	2.5		2.54	4.5	○	◎								
実施例381	5.1		5.09	8.9	△	◎								
実施例382	10.2		10.18	17.9	△	◎								
実施例383	15.3		15.27	26.8	△	◎								
実施例384	20.4		20.36	35.7	△	◎								
比較例1			-					MFI型シリカライト	0.56	CoO _x	≤50	≤67.6	△	×
比較例2			-					MFI型シリカライト	0.56	-	-	-	×	×

【0094】

【表 9】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価															
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A)に対する添加		前駆体材料(C)を用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性													
	種類	孔径 (nm)	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比 (原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間 (h)	ゼオライト型化合物		金属微粒子																	
								構造	通路の平均内径 D _F	種類	平均粒径 D _C																
								(nm)		(nm)																	
実施例385	MCM-41	1.3	有り	1000	TEABr	12	120	FAU	0.74	Co	0.11	0.1	△	△													
実施例386				500					0.74		0.32	0.4	△	△													
実施例387				200					0.74		0.53	0.7	○	△													
実施例388		100							0.74		1.06	1.4	◎	○													
実施例389									2.0		0.74	1.59	2.1	◎	○												
実施例390									2.4		0.74	1.90	2.6	◎	◎												
実施例391									2.6		0.74	2.11	2.9	◎	◎												
実施例392									3.3		0.74	2.64	3.6	◎	◎												
実施例393									6.6		0.74	5.29	7.1	○	◎												
実施例394	SBA-1								13.2		0.74	10.57	14.3	○	◎												
実施例395									19.8		0.74	15.86	21.4	△	◎												
実施例396									26.4		0.74	21.14	28.6	△	◎												
実施例397	MCM-41	1.3		無し				1000	TEABr		11	72	MTW	0.74	Co	0.11	0.1	△	△								
実施例398								500						0.74		0.32	0.4	△	△								
実施例399								200						0.74		0.53	0.7	○	△								
実施例400		100						0.74						1.06		1.4	◎	○									
実施例401								2.0						0.74		1.59	2.1	◎	○								
実施例402								2.4						0.74		1.90	2.6	○	◎								
実施例403								2.6						0.74		2.11	2.9	○	◎								
実施例404								3.3						0.74		2.64	3.6	○	◎								
実施例405								6.6						0.74		5.29	7.1	△	◎								
実施例406	SBA-1							13.2						0.74		10.57	14.3	△	◎								
実施例407								19.8						0.74		15.86	21.4	△	◎								
実施例408								26.4						0.74		21.14	28.6	△	◎								
実施例409	MCM-41	1.1				有り	1000	TEABr					11	72		MTW	0.61	Co	0.09	0.1	△	△					
実施例410							500										0.61		0.26	0.4	△	△					
実施例411							200										0.61		0.44	0.7	○	△					
実施例412		100					0.61										0.87		1.4	◎	○						
実施例413							1.6										0.61		1.31	2.1	◎	○					
実施例414							2.0										0.61		1.57	2.6	◎	○					
実施例415							2.2										0.61		1.74	2.9	◎	◎					
実施例416							2.7										0.61		2.18	3.6	◎	◎					
実施例417							5.4										0.61		4.36	7.1	○	◎					
実施例418	SBA-1						10.9										0.61		8.71	14.3	○	◎					
実施例419							16.3										0.61		13.07	21.4	△	◎					
実施例420							21.8										0.61		17.43	28.6	△	◎					
実施例421	MCM-41	1.1		無し			1000		TEABr		11	72				MTW	0.61		Co	0.09	0.1	△	△				
実施例422							500										0.61			0.26	0.4	△	△				
実施例423							200										0.61			0.44	0.7	○	△				
実施例424		100					0.61										0.87			1.4	◎	○					
実施例425							1.6										0.61			1.31	2.1	◎	○				
実施例426							2.0										0.61			1.57	2.6	◎	○				
実施例427							2.2										0.61			1.74	2.9	◎	◎				
実施例428							2.7										0.61			2.18	3.6	○	◎				
実施例429							5.4										0.61			4.36	7.1	△	◎				
実施例430	SBA-1						10.9										0.61			8.71	14.3	△	◎				
実施例431							16.3										0.61			13.07	21.4	△	◎				
実施例432							21.8										0.61			17.43	28.6	△	◎				

【 0 0 9 5 】

10

20

30

40

50

【表 10】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価						
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A) に対する添加		前駆体材料(C)を 用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性				
	種類	孔径 (nm)	添加剤の有無	金属含有溶 液の添加量 の換算比 (原子数比) Si/M	構造規 定剤の 種類	pH	時間 (h)	ゼオライト型化合物		金属微粒子								
								構造	通路の 平均内径 D _F (nm)	種類	平均粒径 D _C (nm)							
実施例433	MCM -41	1.0	有り	1000	TPABr	12	72	MFI	0.56	Co	0.08	0.1	△	△				
実施例434		1.0		500					0.56		0.24	0.4	△	△				
実施例435		1.0		200					0.56		0.40	0.7	○	△				
実施例436		1.0		100					0.56		0.80	1.4	◎	○				
実施例437		1.5							0.56		1.20	2.1	◎	○				
実施例438		1.8							0.56		1.44	2.6	◎	◎				
実施例439		2.0							0.56		1.60	2.9	◎	◎				
実施例440		2.5							0.56		2.00	3.6	◎	◎				
実施例441		5.0							0.56		4.00	7.1	○	◎				
実施例442	SBA -1	10.0	無し	100					0.56		8.00	14.3	○	◎				
実施例443		15.0							0.56		12.00	21.4	△	◎				
実施例444		20.0							0.56		16.00	28.6	△	◎				
実施例445	MCM -41	1.0		1000					0.56		0.08	0.1	△	△				
実施例446		1.0		500					0.56		0.24	0.4	△	△				
実施例447		1.0		200					0.56		0.40	0.7	○	△				
実施例448		1.0		100					0.56		0.80	1.4	◎	○				
実施例449		1.5							0.56		1.20	2.1	◎	○				
実施例450		1.8							0.56		1.44	2.6	○	◎				
実施例451		2.0							0.56		1.60	2.9	○	◎				
実施例452		2.5							0.56		2.00	3.6	○	◎				
実施例453		5.0							0.56		4.00	7.1	△	◎				
実施例454	SBA -1	10.0							0.56		8.00	14.3	△	◎				
実施例455		15.0							0.56		12.00	21.4	△	◎				
実施例456		20.0							0.56		16.00	28.6	△	◎				
実施例457	MCM -41	1.0	有り	1000	TMABr	12	120	FER	0.57		0.08	0.1	△	△				
実施例458		1.0		500					0.57		0.24	0.4	△	△				
実施例459		1.0		200					0.57		0.41	0.7	○	△				
実施例460		1.0		100					0.57		0.81	1.4	◎	○				
実施例461		1.5							0.57		1.22	2.1	◎	○				
実施例462		1.8							0.57		1.47	2.6	◎	○				
実施例463		2.0							0.57		1.63	2.9	◎	◎				
実施例464		2.5							0.57		2.04	3.6	◎	◎				
実施例465		5.1							0.57		4.07	7.1	○	◎				
実施例466	SBA -1	10.2	無し	100					0.57		8.14	14.3	○	◎				
実施例467		15.3							0.57		12.21	21.4	△	◎				
実施例468		20.4							0.57		16.29	28.6	△	◎				
実施例469	MCM -41	1.0		1000					0.57		0.08	0.1	△	△				
実施例470		1.0		500					0.57		0.24	0.4	△	△				
実施例471		1.0		200					0.57		0.41	0.7	○	△				
実施例472		1.0		100					0.57		0.81	1.4	◎	○				
実施例473		1.5							0.57		1.22	2.1	◎	○				
実施例474		1.8							0.57		1.47	2.6	◎	○				
実施例475		2.0							0.57		1.63	2.9	○	◎				
実施例476		2.5							0.57		2.04	3.6	○	◎				
実施例477		5.1							0.57		4.07	7.1	△	◎				
実施例478	SBA -1	10.2							0.57		8.14	14.3	△	◎				
実施例479		15.3							0.57		12.21	21.4	△	◎				
実施例480		20.4							0.57		16.29	28.6	△	◎				

【0096】

10

20

30

40

50

【表 1 1】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価						
	前駆体材料(A)		前駆体材料(A)に対する添加		前駆体材料(C)を用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性				
	種類	孔径	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比 (原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間	ゼオライト型化合物		金属微粒子								
								通路の平均内径 D _F	平均粒径 D _C	種類	平均粒径 D _C							
		(nm)					(h)	構造	(nm)		(nm)							
実施例481	MCM-41	1.3	有り	1000	12	120	FAU	0.74	Ni	0.11	0.1	△	△					
実施例482				500				0.74		0.32	0.4	△	△					
実施例483				200				0.74		0.53	0.7	○	△					
実施例484				100				0.74		1.06	1.4	◎	○					
実施例485								0.74		1.59	2.1	◎	○					
実施例486								0.74		1.90	2.6	◎	◎					
実施例487								0.74		2.11	2.9	◎	◎					
実施例488								0.74		2.64	3.6	◎	◎					
実施例489								0.74		5.29	7.1	○	◎					
実施例490	SBA-1	0.74						10.57		14.3	○	◎						
実施例491		0.74		15.86				21.4		△	◎							
実施例492		0.74		21.14				28.6		△	◎							
実施例493	MCM-41	1.3		無し				1000		TEABr	11	72	MTW	0.74	0.11	0.1	△	△
実施例494								500						0.74	0.32	0.4	△	△
実施例495								200						0.74	0.53	0.7	○	△
実施例496								100						0.74	1.06	1.4	◎	○
実施例497														0.74	1.59	2.1	◎	○
実施例498														0.74	1.90	2.6	○	◎
実施例499			0.74		2.11	2.9	○		◎									
実施例500			0.74		2.64	3.6	○		◎									
実施例501			0.74		5.29	7.1	△		◎									
実施例502	SBA-1	0.74	10.57		14.3	△	◎											
実施例503		0.74	15.86		21.4	△	◎											
実施例504		0.74	21.14		28.6	△	◎											
実施例505	MCM-41	1.1	有り		1000	11	72	MTW	0.61					0.09	0.1	△	△	
実施例506					500				0.61					0.26	0.4	△	△	
実施例507					200				0.61					0.44	0.7	○	△	
実施例508					100				0.61					0.87	1.4	◎	○	
実施例509									0.61					1.31	2.1	◎	○	
実施例510									0.61					1.57	2.6	◎	○	
実施例511				0.61					1.74	2.9	◎	◎						
実施例512				0.61					2.18	3.6	◎	◎						
実施例513				0.61					4.36	7.1	○	◎						
実施例514	SBA-1	0.61		8.71					14.3	○	◎							
実施例515		0.61		13.07	21.4				△	◎								
実施例516		0.61		17.43	28.6				△	◎								
実施例517	MCM-41	1.1		無し	1000				11	72	MTW	0.61	0.09	0.1	△	△		
実施例518					500							0.61	0.26	0.4	△	△		
実施例519					200							0.61	0.44	0.7	○	△		
実施例520					100							0.61	0.87	1.4	◎	○		
実施例521												0.61	1.31	2.1	◎	○		
実施例522												0.61	1.57	2.6	◎	○		
実施例523			0.61			1.74	2.9	○				◎						
実施例524			0.61			2.18	3.6	○				◎						
実施例525			0.61			4.36	7.1	△				◎						
実施例526	SBA-1	0.61	8.71			14.3	△	◎										
実施例527		0.61	13.07		21.4	△	◎											
実施例528		0.61	17.43		28.6	△	◎											

【 0 0 9 7 】

10

20

30

40

50

【表 1 2】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価		
	前駆体材料(A)		前駆体材料(A)に対する添加		前駆体材料(C)を用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性
	種類	孔径	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比 (原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間	ゼオライト型化合物		金属微粒子				
								構造	通路の平均内径 D _F	種類	平均粒径 D _C			
		(nm)					(h)		(nm)		(nm)			
実施例529	MCM-41	1.0	有り	1000	TPABr	12	72	MFI	0.56	Ni	0.08	0.1	△	△
実施例530		1.0		500					0.56		0.24	0.4	△	△
実施例531		1.0		200					0.56		0.40	0.7	○	△
実施例532		1.0		100					0.56		0.80	1.4	◎	○
実施例533		1.5							0.56		1.20	2.1	◎	○
実施例534		1.8							0.56		1.44	2.6	◎	◎
実施例535		2.0							0.56		1.60	2.9	◎	◎
実施例536		2.5							0.56		2.00	3.6	◎	◎
実施例537		5.0							0.56		4.00	7.1	○	◎
実施例538	SBA-1	10.0	100	0.56	8.00	14.3	○	◎						
実施例539		15.0		0.56	12.00	21.4	△	◎						
実施例540		20.0		0.56	16.00	28.6	△	◎						
実施例541	MCM-41	1.0	無し	1000	TPABr	12	72	MFI	0.56	Ni	0.08	0.1	△	△
実施例542		1.0		500					0.56		0.24	0.4	△	△
実施例543		1.0		200					0.56		0.40	0.7	○	△
実施例544		1.0		100					0.56		0.80	1.4	◎	○
実施例545		1.5							0.56		1.20	2.1	◎	○
実施例546		1.8							0.56		1.44	2.6	○	◎
実施例547		2.0							0.56		1.60	2.9	○	◎
実施例548		2.5							0.56		2.00	3.6	○	◎
実施例549		5.0							0.56		4.00	7.1	△	◎
実施例550	SBA-1	10.0	100	0.56	8.00	14.3	△	◎						
実施例551		15.0		0.56	12.00	21.4	△	◎						
実施例552		20.0		0.56	16.00	28.6	△	◎						
実施例553	MCM-41	1.0	有り	1000	TMABr	12	120	FER	0.57	Ni	0.08	0.1	△	△
実施例554		1.0		500					0.57		0.24	0.4	△	△
実施例555		1.0		200					0.57		0.41	0.7	○	△
実施例556		1.0		100					0.57		0.81	1.4	◎	○
実施例557		1.5							0.57		1.22	2.1	◎	○
実施例558		1.8							0.57		1.47	2.6	◎	○
実施例559		2.0							0.57		1.63	2.9	◎	◎
実施例560		2.5							0.57		2.04	3.6	◎	◎
実施例561		5.1							0.57		4.07	7.1	○	◎
実施例562	SBA-1	10.2	100	0.57	8.14	14.3	○	◎						
実施例563		15.3		0.57	12.21	21.4	△	◎						
実施例564		20.4		0.57	16.29	28.6	△	◎						
実施例565	MCM-41	1.0	無し	1000	TMABr	12	120	FER	0.57	Ni	0.08	0.1	△	△
実施例566		1.0		500					0.57		0.24	0.4	△	△
実施例567		1.0		200					0.57		0.41	0.7	○	△
実施例568		1.0		100					0.57		0.81	1.4	◎	○
実施例569		1.5							0.57		1.22	2.1	◎	○
実施例570		1.8							0.57		1.47	2.6	◎	○
実施例571		2.0							0.57		1.63	2.9	○	◎
実施例572		2.5							0.57		2.04	3.6	○	◎
実施例573		5.1							0.57		4.07	7.1	△	◎
実施例574	SBA-1	10.2	100	0.57	8.14	14.3	△	◎						
実施例575		15.3		0.57	12.21	21.4	△	◎						
実施例576		20.4		0.57	16.29	28.6	△	◎						

【 0 0 9 8 】

10

20

30

40

50

【表 13】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価						
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A) に対する添加		前駆体材料(C)を 用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D ₀ /D _F	触媒活性	耐久性				
	種類	孔径 (nm)	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比 (原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間 (h)	ゼオライト型化合物 構造	平均内径 D _F (nm)	種類	平均粒径 D _C (nm)							
実施例577	MCM-41	1.3	有り	1000	12	120	FAU	0.74	Fe	0.11	0.1	△	△					
実施例578				500				0.74		0.32	0.4	△	△					
実施例579				200				0.74		0.53	0.7	○	△					
実施例580		2.0		100				0.74		1.06	1.4	◎	○					
実施例581								0.74		1.59	2.1	◎	○					
実施例582								0.74		1.90	2.6	◎	◎					
実施例583								0.74		2.11	2.9	◎	◎					
実施例584								0.74		2.64	3.6	◎	◎					
実施例585								0.74		5.29	7.1	○	◎					
実施例586	SBA-1	13.2						0.74		10.57	14.3	○	◎					
実施例587		19.8						0.74		15.86	21.4	△	◎					
実施例588		26.4						0.74		21.14	28.6	△	◎					
実施例589	MCM-41	1.3		無し				1000		11	72	MTW	0.74	Fe	0.11	0.1	△	△
実施例590								500					0.74		0.32	0.4	△	△
実施例591								200					0.74		0.53	0.7	○	△
実施例592		2.0						100					0.74		1.06	1.4	◎	○
実施例593													0.74		1.59	2.1	◎	○
実施例594													0.74		1.90	2.6	○	◎
実施例595			0.74		2.11	2.9	○		◎									
実施例596			0.74		2.64	3.6	○		◎									
実施例597			0.74		5.29	7.1	△		◎									
実施例598	SBA-1	13.2	0.74		10.57	14.3	△		◎									
実施例599		19.8	0.74		15.86	21.4	△		◎									
実施例600		26.4	0.74		21.14	28.6	△		◎									
実施例601	MCM-41	1.1	有り		1000	11	72	MTW	0.61				Fe		0.09	0.1	△	△
実施例602					500				0.61						0.26	0.4	△	△
実施例603					200				0.61						0.44	0.7	○	△
実施例604		1.6			100				0.61						0.87	1.4	◎	○
実施例605									0.61						1.31	2.1	◎	○
実施例606									0.61						1.57	2.6	◎	○
実施例607				0.61					1.74	2.9	◎	◎						
実施例608				0.61					2.18	3.6	◎	◎						
実施例609				0.61					4.36	7.1	○	◎						
実施例610	SBA-1	10.9		0.61					8.71	14.3	○	◎						
実施例611		16.3		0.61					13.07	21.4	△	◎						
実施例612		21.8		0.61					17.43	28.6	△	◎						
実施例613	MCM-41	1.1		無し	1000				11	72	MTW	0.61		Fe	0.09	0.1	△	△
実施例614					500							0.61			0.26	0.4	△	△
実施例615					200							0.61			0.44	0.7	○	△
実施例616		1.6			100							0.61			0.87	1.4	◎	○
実施例617												0.61			1.31	2.1	◎	○
実施例618												0.61			1.57	2.6	◎	○
実施例619			0.61			1.74	2.9	○				◎						
実施例620			0.61			2.18	3.6	○				◎						
実施例621			0.61			4.36	7.1	△				◎						
実施例622	SBA-1	10.9	0.61			8.71	14.3	△				◎						
実施例623		16.3	0.61			13.07	21.4	△				◎						
実施例624		21.8	0.61			17.43	28.6	△				◎						

【0099】

10

20

30

40

50

【表 1 4】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価		
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A) に対する添加		前駆体材料(C)を 用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D ₀ /D _F	触媒活性	耐久性
	種類	孔径	添加剤の有無	金属含有溶 液の添加量 の換算比 (原子数比) Si/M	構造規 定剤の 種類	pH	時間	セラミック化合物		金属微粒子				
								構造	通路の 平均内径 D _F	種類	平均粒径 D ₀			
		(nm)					(h)		(nm)		(nm)			
実施例625	MCM -41	1.0	有り	1000	TPABr	12	72	MFI	0.56	Fe	0.08	0.1	△	△
実施例626		1.0		500					0.56		0.24	0.4	△	△
実施例627		1.0		200					0.56		0.40	0.7	○	△
実施例628		1.0		100					0.56		0.80	1.4	◎	○
実施例629		1.5							0.56		1.20	2.1	◎	○
実施例630		1.8							0.56		1.44	2.6	◎	◎
実施例631		2.0							0.56		1.60	2.9	◎	◎
実施例632		2.5							0.56		2.00	3.6	◎	◎
実施例633		5.0							0.56		4.00	7.1	○	◎
実施例634	10.0	0.56	8.00						14.3		○	◎		
実施例635	SBA -1	15.0	0.56						12.00		21.4	△	◎	
実施例636		20.0	0.56						16.00		28.6	△	◎	
実施例637		1.0	1000	0.56					0.08		0.1	△	△	
実施例638	MCM -41	1.0	500	0.56					0.24		0.4	△	△	
実施例639		1.0	200	0.56					0.40		0.7	○	△	
実施例640		1.0	100	0.56					0.80		1.4	◎	○	
実施例641		1.5		0.56					1.20		2.1	◎	○	
実施例642		1.8		0.56					1.44		2.6	○	◎	
実施例643		2.0		0.56					1.60		2.9	○	◎	
実施例644		2.5		0.56					2.00		3.6	○	◎	
実施例645		5.0		0.56					4.00		7.1	△	◎	
実施例646		SBA -1		10.0					0.56		8.00	14.3	△	◎
実施例647	15.0			0.56					12.00		21.4	△	◎	
実施例648	20.0			0.56					16.00		28.6	△	◎	
実施例649	MCM -41	1.0	有り	1000	TMABr	12	120	FER	Fe	0.08	0.1	△	△	
実施例650		1.0		500						0.57	0.24	0.4	△	△
実施例651		1.0		200						0.57	0.41	0.7	○	△
実施例652		1.0		100						0.57	0.81	1.4	◎	○
実施例653		1.5								0.57	1.22	2.1	◎	○
実施例654		1.8								0.57	1.47	2.6	◎	○
実施例655		2.0								0.57	1.63	2.9	◎	◎
実施例656		2.5								0.57	2.04	3.6	◎	◎
実施例657		5.1								0.57	4.07	7.1	○	◎
実施例658	SBA -1	10.2	0.57							8.14	14.3	○	◎	
実施例659		15.3	0.57							12.21	21.4	△	◎	
実施例660		20.4	0.57							16.29	28.6	△	◎	
実施例661	MCM -41	1.0	無し	1000						0.57	0.08	0.1	△	△
実施例662		1.0		0.57						0.24	0.4	△	△	
実施例663		1.0		0.57						0.41	0.7	○	△	
実施例664		1.0		100						0.57	0.81	1.4	◎	○
実施例665		1.5								0.57	1.22	2.1	◎	○
実施例666		1.8								0.57	1.47	2.6	◎	○
実施例667		2.0								0.57	1.63	2.9	○	◎
実施例668		2.5								0.57	2.04	3.6	○	◎
実施例669		5.1								0.57	4.07	7.1	△	◎
実施例670	SBA -1	10.2	0.57							8.14	14.3	△	◎	
実施例671		15.3	0.57							12.21	21.4	△	◎	
実施例672		20.4	0.57							16.29	28.6	△	◎	

【 0 1 0 0 】

10

20

30

40

50

【表 15】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体					性能評価				
	前駆体材料(A)		前駆体材料(A)に対する添加		前駆体材料(C)を用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性			
	種類	孔径 (nm)	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比(原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間 (h)	ゼオライト型化合物		金属微粒子							
								構造	通路の平均内径 D _F	種類	平均粒径 D _C						
実施例673	MCM-41	1.3	有り	1000	12	120	FAU	0.74	Cu	0.11	0.1	△	△				
実施例674				500				0.74		0.32	0.4	△	△				
実施例675				200				0.74		0.53	0.7	○	△				
実施例676		2.0		100				0.74		1.06	1.4	◎	○				
実施例677								0.74		1.59	2.1	◎	○				
実施例678								0.74		1.90	2.6	◎	◎				
実施例679								0.74		2.11	2.9	◎	◎				
実施例680								0.74		2.64	3.6	◎	◎				
実施例681								0.74		5.29	7.1	○	◎				
実施例682	SBA-1	13.2						0.74		10.57	14.3	○	◎				
実施例683		19.8						0.74		15.86	21.4	△	◎				
実施例684		26.4						0.74		21.14	28.6	△	◎				
実施例685	MCM-41	1.3	無し	1000			TEABr	11	72	MTW	Cu	0.11	0.1	△	△		
実施例686				500								0.74	0.32	0.4	△	△	
実施例687				200								0.74	0.53	0.7	○	△	
実施例688		2.0		100								0.74	1.06	1.4	◎	○	
実施例689												0.74	1.59	2.1	◎	○	
実施例690												0.74	1.90	2.6	○	◎	
実施例691												0.74	2.11	2.9	○	◎	
実施例692												0.74	2.64	3.6	○	◎	
実施例693												0.74	5.29	7.1	△	◎	
実施例694	SBA-1	13.2										0.74	10.57	14.3	△	◎	
実施例695		19.8										0.74	15.86	21.4	△	◎	
実施例696		26.4										0.74	21.14	28.6	△	◎	
実施例697	MCM-41	1.1	有り	1000	11	72					MTW	Cu	0.09	0.1	△	△	
実施例698				500									0.61	0.26	0.4	△	△
実施例699				200									0.61	0.44	0.7	○	△
実施例700		1.6		100									0.61	0.87	1.4	◎	○
実施例701													0.61	1.31	2.1	◎	○
実施例702													0.61	1.57	2.6	◎	○
実施例703													0.61	1.74	2.9	◎	◎
実施例704													0.61	2.18	3.6	◎	◎
実施例705													0.61	4.36	7.1	○	◎
実施例706	SBA-1	10.9											0.61	8.71	14.3	○	◎
実施例707		16.3											0.61	13.07	21.4	△	◎
実施例708		21.8											0.61	17.43	28.6	△	◎
実施例709	MCM-41	1.1	無し	1000			11	72	MTW	Cu		0.09	0.1	△	△		
実施例710				500								0.61	0.26	0.4	△	△	
実施例711				200								0.61	0.44	0.7	○	△	
実施例712		1.6		100								0.61	0.87	1.4	◎	○	
実施例713												0.61	1.31	2.1	◎	○	
実施例714												0.61	1.57	2.6	◎	○	
実施例715												0.61	1.74	2.9	○	◎	
実施例716												0.61	2.18	3.6	○	◎	
実施例717												0.61	4.36	7.1	△	◎	
実施例718	SBA-1	10.9										0.61	8.71	14.3	△	◎	
実施例719		16.3										0.61	13.07	21.4	△	◎	
実施例720		21.8										0.61	17.43	28.6	△	◎	

【0101】

10

20

30

40

50

【表 1 6】

No.	機能性構造体の製造条件							機能性構造体				性能評価						
	前駆体材料 (A)		前駆体材料(A)に対する添加		前駆体材料(C)を用いた水熱処理条件			骨格体		機能性物質		D _C /D _F	触媒活性	耐久性				
	種類	孔径 (nm)	添加剤の有無	金属含有溶液の添加量の換算比 (原子数比) Si/M	構造規定剤の種類	pH	時間 (h)	ゼオライト型化合物	金属微粒子									
								通路の平均内径 D _F	平均粒径 D _C									
								構造 (nm)	種類	平均粒径 D _C (nm)								
実施例721	MCM-41	1.0	有り	1000	TPABr	12	72	MFI		0.56	0.08	0.1	△	△				
実施例722		1.0		500					0.56	0.24	0.4	△	△					
実施例723		1.0		200					0.56	0.40	0.7	○	△					
実施例724		1.0		100					0.56	0.80	1.4	◎	○					
実施例725		1.5							0.56	1.20	2.1	◎	○					
実施例726		1.8							0.56	1.44	2.6	◎	◎					
実施例727		2.0							0.56	1.60	2.9	◎	◎					
実施例728		2.5							0.56	2.00	3.6	◎	◎					
実施例729		5.0							0.56	4.00	7.1	○	◎					
実施例730		10.0							0.56	8.00	14.3	○	◎					
実施例731	SBA-1	15.0	0.56						12.00	21.4	△	◎						
実施例732		20.0	0.56	16.00					28.6	△	◎							
実施例733	MCM-41	1.0	無し	1000				Cu	FER		0.56	0.08	0.1	△	△			
実施例734		1.0		500						0.56	0.24	0.4	△	△				
実施例735		1.0		200						0.56	0.40	0.7	○	△				
実施例736		1.0		100						0.56	0.80	1.4	◎	○				
実施例737		1.5								0.56	1.20	2.1	◎	○				
実施例738		1.8								0.56	1.44	2.6	○	◎				
実施例739		2.0								0.56	1.60	2.9	○	◎				
実施例740		2.5								0.56	2.00	3.6	○	◎				
実施例741		5.0								0.56	4.00	7.1	△	◎				
実施例742		SBA-1								10.0	0.56	8.00	14.3	△	◎			
実施例743	15.0		0.56							12.00	21.4	△	◎					
実施例744	20.0	0.56	16.00	28.6						△	◎							
実施例745	MCM-41	1.0	有り	1000	TMABr	12	120			FER		0.57	0.08	0.1	△	△		
実施例746		1.0		500							0.57	0.24	0.4	△	△			
実施例747		1.0		200							0.57	0.41	0.7	○	△			
実施例748		1.0		100							0.57	0.81	1.4	◎	○			
実施例749		1.5									0.57	1.22	2.1	◎	○			
実施例750		1.8									0.57	1.47	2.6	◎	○			
実施例751		2.0									0.57	1.63	2.9	◎	◎			
実施例752		2.5									0.57	2.04	3.6	◎	◎			
実施例753		5.1									0.57	4.07	7.1	○	◎			
実施例754		SBA-1									10.2	0.57	8.14	14.3	○	◎		
実施例755	15.3		0.57								12.21	21.4	△	◎				
実施例756	20.4	0.57	16.29	28.6							△	◎						
実施例757	MCM-41	1.0	無し	1000										0.57	0.08	0.1	△	△
実施例758		1.0		500									0.57	0.24	0.4	△	△	
実施例759		1.0		200									0.57	0.41	0.7	○	△	
実施例760		1.0		100									0.57	0.81	1.4	◎	○	
実施例761		1.5											0.57	1.22	2.1	◎	○	
実施例762		1.8											0.57	1.47	2.6	◎	○	
実施例763		2.0											0.57	1.63	2.9	○	◎	
実施例764		2.5											0.57	2.04	3.6	○	◎	
実施例765		5.1											0.57	4.07	7.1	△	◎	
実施例766		SBA-1											10.2	0.57	8.14	14.3	△	◎
実施例767	15.3		0.57										12.21	21.4	△	◎		
実施例768	20.4	0.57	16.29	28.6									△	◎				

【0102】

表1～16から明らかなように、断面観察により骨格体の内部に機能性物質が保持されていることが確認された機能性構造体（実施例1～768）は、単に機能性物質が骨格体の外表面に付着しているだけの機能性構造体（比較例1）または機能性物質を何ら有していない骨格体そのもの（比較例2）と比較して、ブチルベンゼンの分解反応において優れた触媒活性を示し、触媒としての耐久性にも優れていることが分かった。

【0103】

また、上記評価〔C〕で測定された機能性構造体の骨格体内部に包接された金属量（質量%）と、生成液中に含まれるブチルベンゼンよりも分子量が小さい化合物の収率（mo

10

20

30

40

50

l %) との関係の評価した。評価方法は、上記[D]「性能評価」における「(1) 触媒活性」で行った評価方法と同じとした。

その結果、各実施例において、前駆体材料(A)に添加する金属含有溶液の添加量が、原子数比 Si/M ($M=Fe$) に換算して $50 \sim 200$ (機能性構造体に対する金属酸化物微粒子の金属元素(M)の含有量が $0.5 \sim 2.5$ 質量%) であると、生成液中に含まれるブチルベンゼンよりも分子量が小さい化合物の収率が、 $32 \text{ mol}\%$ 以上となり、ブチルベンゼンの分解反応における触媒活性が合格レベル以上であることが分かった。

【0104】

一方、骨格体の外表面にのみ機能性物質を付着させた比較例1のシリカライトは、機能性物質を何ら有していない比較例2の骨格体そのものと比較して、ブチルベンゼンの分解反応における触媒活性は改善されるものの、実施例1～768の機能性構造体に比べて、触媒としての耐久性は劣っていた。

10

【0105】

また、機能性物質を何ら有していない比較例2の骨格体そのものは、ブチルベンゼンの分解反応において触媒活性は殆ど示さず、実施例1～768の機能性構造体と比較して、触媒活性および耐久性の双方が劣っていた。

【符号の説明】

【0106】

- 1 機能性構造体
- 10 骨格体
- 10a 外表面
- 11 通路
- 11a 孔
- 12 拡張部
- 20 機能性物質
- 30 機能性物質
- D_C 平均粒径
- D_F 平均内径
- D_E 内径

20

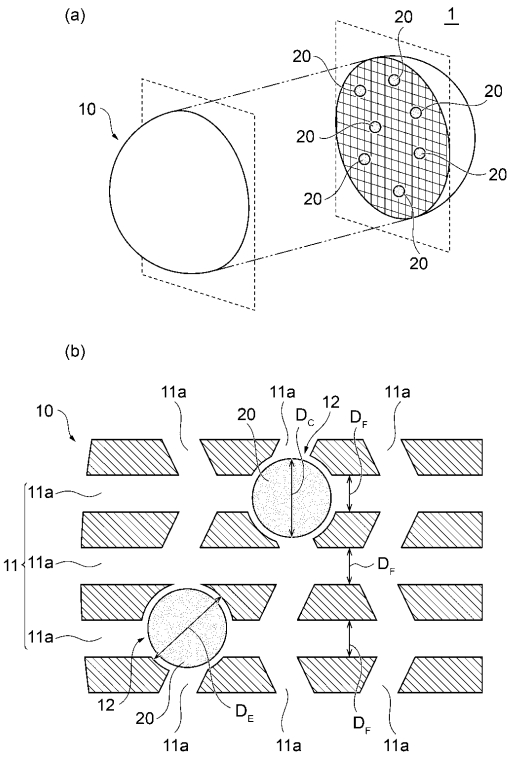
30

40

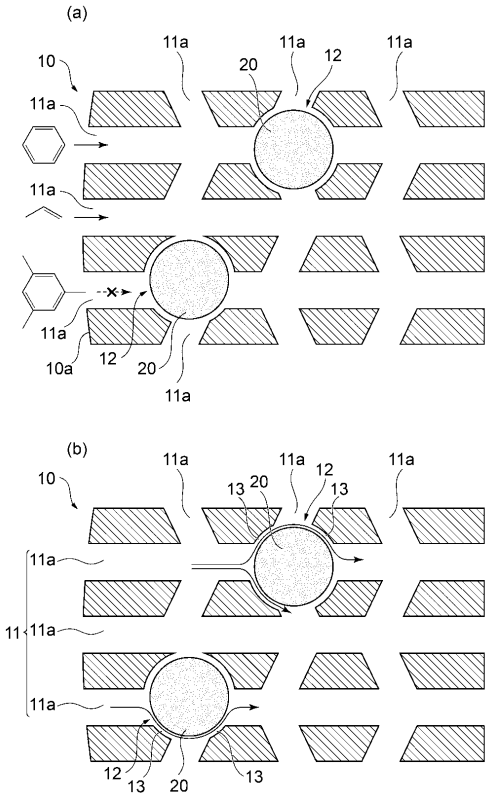
50

【図面】

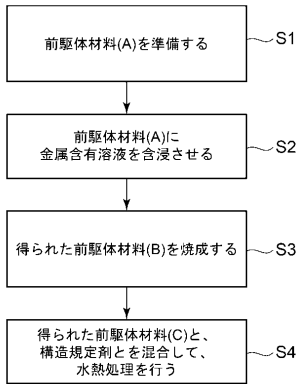
【図 1】



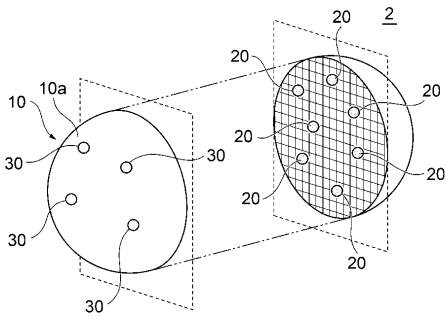
【図 2】



【図 3】



【図 4】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

- 大学法人北海道大学内
(72)発明者 中坂 佑太
北海道札幌市北区北8条西5丁目 国立大学法人北海道大学内
(72)発明者 吉川 琢也
北海道札幌市北区北8条西5丁目 国立大学法人北海道大学内
(72)発明者 加藤 禎宏
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 古河電気工業株式会社内
(72)発明者 福嶋 将行
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 古河電気工業株式会社内
(72)発明者 稲森 康次郎
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 古河電気工業株式会社内
(72)発明者 高橋 尋子
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 古河電気工業株式会社内
(72)発明者 馬場 祐一郎
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 古河電気工業株式会社内
(72)発明者 関根 可織
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 古河電気工業株式会社内
合議体
審判長 宮澤 尚之
審判官 小野 久子
審判官 後藤 政博
(56)参考文献 国際公開第2010/097108 (WO, A1)
特表2000-511107 (JP, A)
特開2005-314208 (JP, A)
特開2015-189586 (JP, A)
(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
B01J21/00-38/74