T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Study on the synthesis and physicochemical properties of CHA-type aluminosilicate zeolites with Al atom distribution in the zeolite framework controlled
著者(和文)	西鳥羽俊貴
Author(English)	Toshiki Nishitoba
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10985号, 授与年月日:2018年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:吉田 尚弘,野村 淳子,鎌田 慶吾,本倉 健,横井 俊之
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10985号, Conferred date:2018/9/20, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

（博士課程）

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第　　号		学位申請者氏名		西鳥羽　俊貴	
論文審査 審 査 員		氏　名	職　名		氏　名	職　名
	主査	吉田　尚弘	教　授	審査員	横井　俊之	准教授
	審査員	野村　淳子	准教授			
		本倉　　健	准教授			
		鎌田　慶吾	准教授			

論文審査の要旨（2000 字程度）

本論文は「Study on the synthesis and physicochemical properties of CHA-type aluminosilicate zeolites with Al atom distribution in the zeolite framework controlled (骨格内 Al 原子分布を制御した CHA 型アルミノシリケートゼオライトの合成と物理化学的特性に関する研究)と題し、ゼオライト骨格内のヘテロ原子の位置制御と物理化学的特性の評価に関する研究成果が英文で書かれ、全 5 章より構成されている。

第 1 章「General introduction (序論)」では、ゼオライトの触媒としての応用例を述べ、CHA 型ゼオライトの構造および既存の合成例を説明するとともに、本研究の意義と目的を述べている。

第 2 章「Al distribution and catalytic performance of CHA-type zeolite synthesized with various organic structure directing agents (種々の有機構造規定剤を用いて合成された CHA 型ゼオライトの Al 原子分布と触媒特性)」では、異なる有機構造規定剤（OSDA）を用いて CHA 型ゼオライトの合成を行い、水熱耐久性およびメタノールからオレフィンへの転換反応（MTO 反応）の触媒寿命の評価を行っている。用いる OSDA の種類により生成する CHA 型ゼオライトの Si/Al 比が大きく異なることを明らかにしている。水熱耐久性、MTO 反応の触媒寿命は Si/Al 比に大きく影響を受け、Si/Al 比が低い試料は水熱耐久性が低く、MTO 反応における寿命が短いことを見出している。以上の結果より、種々の OSDA を用いた際、Si/Al 比および粒子状態の制御ができず Al 原子分布の評価が困難であると考察している。

第 3 章「Effect of starting materials on the Al distribution and catalytic performance of CHA-type aluminosilicate zeolite (出発原料が CHA 型アルミノシリケートゼオライトの Al 原子分布および触媒活性に及ぼす影響)」では、ゼオライト合成時のアルミナ源に FAU 型ゼオライト、水酸化アルミニウムを用いて、出発原料が生成する CHA 型ゼオライトの Al 原子分布に及ぼす影響について明らかにしている。原料の FAU は Si/Al = 2.8 であり、$Si(OSi)_2(OAl)_2$ ($Q^4(2Al)$) 種が多く存在する。^{29}Si MAS NMR 測定の結果より、Al 源に FAU のみを用いて合成した場合は生成した CHA(Si/Al = 12)は $Q^4(2Al)$ 種が多く存在することを見出している。一方、Al 源に水酸化アルミニウムのみを用いた場合、生成した CHA (Si/Al =10.8)は $Si(OSi)_3(OAl)_1$（$Q^4(1Al)$）が多く存在していることを見出している。さらに、FAU および水酸化アルミニウムの両方を Al 源として用いて割合を変化させたところ、FAU 由来の Al 種が増加するにつれて、生成した CHA の $Q^4(2Al)$ 量が増加することを明らかにしている。これらの結果から、FAU 由来の $Q^4(2Al)$ が生成した CHA に組み込まれていると推定している。また、得られた試料に対して水熱耐久試験、MTO 反応を行ったところ、$Q^4(2Al)$の多い試料は水熱耐久性が低く、MTO 反応におけるコーク堆積量が多いことを見出している。これは $Q^4(2Al)$ 種のような近接した Al 種により部分的に骨格が歪んでおり、構造が不安定になっているため水熱耐久性が低下したためであると考察している。

第 4 章「Effects of starting materials on Al distribution and catalytic performance of CHA-type zeolite without organic structure directing agents (OSDA を用いない条件において出発原料が生成する CHA 型ゼオライトの Al 原子分布および触媒活性に及ぼす影響)」では、OSDA を用いない条件下で原料の FAU 型ゼオライトが生成する CHA 型ゼオライトの Al 原子分布に及ぼす影響について明らかにしている。原料の FAU は Si/Al =15 であり $Q^4(1Al)$ 種が多く存在している。出発原料に FAU のみを用いて合成した場合、生成する CHA (Si/Al = 3.8) は非晶質なシリカアルミナ源を用いた場合と比べて $Q^4(1Al)$ が多く存在することを見出している。この結果は、原料の FAU 由来の $Q^4(1Al)$, $Si(OSi)_4$ ($Q^4(0Al)$)が生成した CHA に組み込まれていることを示している。得られた試料の水熱耐久性を評価し、高 Al 量の CHA (Si/Al = 3.8 – 4.0)においても $Q^4(1Al)$が多い試料は水熱耐久性が高いことを見出している。

第 5 章「General conclusion (結論)」では、本研究の結論を述べている。高 Al 量の領域における CHA 型ゼオライトの Al 原子分布制御を初めて達成できたとしている。また、CHA 型ゼオライトにおける Al 原子分布が水熱耐久性に影響を与えること、ゼオライトを出発原料とした際、原料ゼオライトの Al 原子分布が生成物のそれに影響を与えることが初めて示されたとしている。

以上要するに、本論文はゼオライト骨格内の Al 原子の位置制御と物理化学的特性の評価に関する新たな知見を得たもので、工学上貢献するところが大きい。よって本論文は博士（工学）の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ（T2R2）にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。