

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	様々な炭素源からの低級オレフィン合成用ゼオライト触媒に関する研究
Title(English)	Study on zeolite catalysts for producing lower olefins form various carbon sources
著者(和文)	國武祐輔
Author(English)	Yusuke Kunitake
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11469号, 授与年月日:2020年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:野村 淳子,横井 俊之,本倉 健,眞中 雄一,庄子 良晃
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11469号, Conferred date:2020/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

論文の要約

様々な炭素源からの低級オレフィン合成用ゼオライト触媒に関する研究

Study on zeolite catalysts for producing lower olefins

from various carbon sources

物質理工学院 応用化学系 応用化学コース

國武 祐輔

本論文は様々な炭素源を原料とする低級オレフィン製造に関して、有用であるゼオライト触媒の開発に関する内容である。

第1章「序章」ではゼオライトの構造、一般的な合成法、材料や触媒としての機能について説明し、本研究に関連する反応の工業的な位置づけについて述べた。

第2章「エチレンまたはメタノールを原料とした低級オレフィン製造のためのゼオライト触媒開発」ではエチレンを原料にプロピレン及びブテン類へ転換する反応に用いる触媒として小細孔ゼオライトのひとつである AEI 型ゼオライトに着目した。AEI 型ゼオライトは合成方法が限られており、直接合成による Al 含有量(酸量)の少ない触媒の調製が困難である。そのため炭化水素転換反応において、迅速な失活が起こることが原因として挙げられる。そこで本研究では Al よりも弱い酸強度を示すことが報告されている B または Ga を、Al の代わりに一部導入することで Al 含有量の低減を試みた。合成条件を検討することで Al 含有量が少ないサンプルの調製に成功し、得られたサンプルは少ない酸量を示した。また多角的なキャラクタリゼーションにより、ゼオライト骨格内に B または Ga が存在していることを確認した。得られたサンプルをエチレン転換反応に用いたところ、B を導入したサンプルでは Al のみを含むサンプルよりも失活が緩やかになった。またメタノールから低級オレフィンへ変換する反応 (MTO) においても同様に、触媒寿命が改善した。一方 Ga を含有したサンプルでは触媒寿命が短くなったが、これは骨格外 Ga の影響であると考えられる。本章の検討から AEI 型ゼオライトへ様々なヘテロ原子の導入の可能性を示し、触媒材料として様々な反応への応用性の拡大に繋がった。

第3章「プロピレンを原料としたブテン類生成のためのゼオライト触媒の模索」ではプロピレンからブテン類を合成するためのゼオライト触媒の開発を目的とし、ゼオライト構造のスクリーニングおよび小細孔ゼオライトの活性向上検討を行った。適したゼオライト構造の模索および適した酸性質の検討より、プロピレンからブテン類生成のためのゼオライト触媒を見出した。また本章の検討から、プロピレンからブテン類を効率よく生成するためのゼオライト触媒の設計へのアプローチのヒントに繋がると考えられる。

第4章「Ni 触媒を用いたメタンの酸化的転換にゼオライト担体が与える影響」ではメタンの酸化的転換反応においてゼオライトが Ni の担体として及ぼす影響について、ゼオライト骨格内の元素、組成および Ni の担持方法について検討を行った。その結果、アルミノシリケートに対してイオン交換法で担持したサンプルで比較的多くの C2 炭化水素が生成した。Ni 種の構造等の詳細な検討が必要であるが、メタンの酸化的転換に対しては担持方法も重要であることが示唆された。

第5章「総括」では本研究全体を総括し、各章で得られた結果がそれぞれのプロセスに与える影響について考察した。本研究から、様々な炭化水素源から各種低級オレフィンの製造に用いられるゼオライト触媒の開発において、触媒設計の指針を与えることを期待する。