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)	Development of medium-pore zeolites with high catalytic performance by modification of synthesis method
著者(和文)	QINFeiyu
Author(English)	Qin Feiyu
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12103号, 授与年月日:2021年9月24日, 学位の種別:課程博士, 審査員:横井 俊之,野村 淳子,多湖 輝興,田巻 孝敬,桑田 繁樹
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12103号, Conferred date:2021/9/24, 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		Feiyu QIN	
論文審査 審査員		氏　名	職　名		氏　名	職　名
	主査	横井　俊之	准教授	審査員	桑田　繁樹	准教授
	審査員	野村　淳子	准教授			
		多湖　輝興	教授			
		田巻　孝敬	准教授			

論文審査の要旨（2000 字程度）

本論文は「Development of medium-pore zeolites with high catalytic performance by modification of synthesis method」（和訳：合成手法の改良による高い触媒性能を有する中細孔ゼオライトの開発）と題し、全５章から構成されている。
第１章「General introduction」では、まず、ゼオライトの構造、物性、応用について概観している。また、近年ゼオライト科学分野で注目されているゼオライト骨格内の活性点の位置制御についても述べられている。それを踏まえて、中細孔を有する MFI 型と TUN 型ゼオライトに着目した理由、ならびに合成手法の改良による高い触媒性能を有する中細孔ゼオライトの開発という本論文での研究目的が提示されている。
第２章「Synthesis of TS-1 with improved catalytic oxidation performance by controlling hydrolysis process and gel composition」では、優れた固体酸化触媒である MFI 型チタノシリケートゼオライト、TS-1 に着目し、その合成手法の改良により触媒性能を向上させた結果が述べられている。合成原料であるシリカ源やチタン源の添加方法、ならびに合成ゲルの熟成条件（温度・時間）の精査に取り組み、合成ゲルの調製条件が結晶性、細孔特性、Ti の状態に及ぼす影響について明らかにし、合成ゲルの調製条件の最適化を達成している。加えて、様々な調製条件により得た TS-1 の 1-ヘキセンと 2-メチル-2-ペンテンのエポキシ化活性を評価し、調製条件と触媒性能の関係を明らかにしている。特筆すべき点として、合成ゲルの調製条件により骨格内の Ti の分布を制御できることを初めて見出している。また、TS-1 の結晶化に必須な有機構造規定剤であるテトラプロピルアンモニウムヒドロキシドの添加量を検討し、有機構造規定剤の添加量によっても Ti の分布を制御できることを見出している。本章で得られた成果は種々のチタノシリケートゼオライトの高性能化に寄与するものである。
第３章「A novel boron and aluminum containing TUN-type zeolites synthesis, acidic properties, and *n*-hexane cracking behaviors」では、TUN 型構造を有するゼオライトに着目し、合成条件の検討を重ね、初めて TUN 型ゼオライトの骨格にホウ素を導入した結果が述べられている。アルミニウムとホウ素の両方を骨格に導入することで、酸量を減少させつつ、酸強度を高めることができること、また *n*-ヘキサンのクラッキングにおいて既存のゼオライト触媒（ZSM-5、Beta）よりも高いプロピレン選択性を示すことを見出している。本章の検討から様々なヘテロ元素を TUN 型ゼオライトへ導入できる可能性が示唆され、機能性材料として様々な応用展開が期待できる。
第４章「Post-treatment of [Al, B]-TUN catalyst and applied in n-hexane cracking reactions」では、第３章で開発したアルミニウムとホウ素の両方を骨格に導入した TUN 型ゼオライトに対し、更なる触媒性能の向上を目的に種々のポスト処理を施した結果が述べられている。水蒸気処理、液相酸処理、水蒸気処理と液相酸処理の組み合わせなどを検討した結果、650℃での水蒸気処理後に 2 mol/L の硝酸を用いた液相酸処理を実施することで、*n*-ヘキサンのクラッキングにおいて高いプロピレン選択率を維持したまま触媒寿命を大幅に改善できることを見出している。この要因について、各種構造解析の結果を基に、ポスト処理により酸点の性質が最適化されたためであると考察している。本章で得られた成果は基礎化学品として重要なプロピレンを効率的に得るための触媒プロセスの向上に繋がるものである。
第５章「Conclusions and future prospects」では、本論文の内容を総括し、今後の展望について記述している。
これを要するに、本論文は中細孔を有する MFI 型、TUN 型構造を有するゼオライトの調製手法の改良による物性の制御、特に触媒性能の向上について述べられたものである。本論文の成果はゼオライトの合成、物性制御手法の多様化、ならびに新たな用途開発につながることが期待できるため、工学上、工業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。