

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ゼオライト内包ニッケル触媒によるバイオマス由来アルコールからの水素および合成ガスの製造に関する研究
Title(English)	Study on the Production of Hydrogen and Syngas from Biomass-Derived Alcohols using Zeolite-Encapsulated Nickel Catalysts
著者(和文)	ArayawateSirintra
Author(English)	Sirintra Arayawate
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12622号, 授与年月日:2023年12月31日, 学位の種別:課程博士, 審査員:多湖 輝興,関口 秀俊,下山 裕介,松本 秀行,横井 俊之
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12622号, Conferred date:2023/12/31, 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

(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	SIRINTRA ARAYAWATE	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	多湖 輝興	教授	横井 俊之	准教授
	審査員	関口 秀俊	教授		
		下山 裕介	教授		
		松本 秀行	准教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Study on the Production of Hydrogen and Syngas from Biomass-Derived Alcohols using Zeolite-Encapsulated Nickel Catalysts」と題し、英文で書かれ、以下の5章から構成されている。

第1章「Introduction」では、バイオマスからの合成ガス（水素と一酸化炭素の混合ガス）、および水素（H₂）製造に関して、バイオマスの種類、改質反応器と反応プロセスを概説している。さらに、本研究で対象とするエタノール水蒸気改質（Ethanol Steam Reforming, ESR）反応に有効な触媒金属種として、資源的に豊富であり高活性を示すニッケル（Ni）系触媒を採りあげ、同触媒における ESR 反応の主反応と副反応の各反応経路を紹介すると共に、その問題点である触媒上への炭素析出と金属活性種の熱凝集による触媒劣化現象を概説している。そして、その解決法としてゼオライトによる Ni ナノ粒子の内包構造を提案し、この研究の目的と意義、および論文の構成を示している。

第2章「Preparation of Ni@Silicalite-1 with Ni-Phyllosilicate precursor」では、MFI ゼオライトである Silicalite-1 (S-1) に Ni 微粒子が内包された触媒 (Ni@S-1) の調製法を提案している。Ni とシリカ (SiO₂) の層状化合物であるフィロシリケート (Ni phyllosilicate, Ni-PS) 固体粉末を Ni 源とし、同粉末をゼオライト合成母液に投入した後、水熱合成処理を施すことで、S-1 の結晶間空隙に Ni-PS が固定化された、Ni-PS@S-1 が得られる。同 Ni-PS@S-1 を 850°C で水素還元することで、Ni-PS は粒子サイズが 3~4 nm 程度の Ni 微粒子へ還元され、内包構造が形成される (Ni@S-1)。Ni 微粒子の内包構造形成に強く影響するパラメーターとして、水熱合成時の Si/H₂O 比、溶液の熟成時間と水熱合成時間を主に検討し、Ni の固定化場所と ESR 反応活性、固体炭素の析出抑制の観点から最適な触媒調製条件を選定している。

第3章「Study of reaction mechanism and pathway of ethanol steam reforming on Ni over Silicalite-1」では、Ni を固定化していない触媒担体（ここでは Silicalite-1, S-1）、および Ni@S-1 触媒を用いて 500~800°C の温度範囲で ESR 反応を実施し、反応経路を明らかにするとともに、生成物収率を熱力学平衡計算結果と比較している。Ni@S-1 触媒を用いた ESR 反応試験の結果、700°C 以上の反応温度域にて熱力学的平衡に達することを明らかにしている。Ni を固定化していない S-1 のみの場合、主な反応経路は表面のシラノール基によるエタノールからエチレンへの脱水反応であり、一方、Ni 微粒子が存在する場合は、Ni 微粒子上でのエタノールの脱水素反応によるアセトアルデヒドの生成、および C-C 結合の開裂と水蒸気改質反応による H₂ や CO の生成が主反応であることを示している。固体炭素析出は、主にエタノールの脱水反応により副生するエチレンを経由して生成するが、700°C 以上では水蒸気改質反応が促進されるため、炭素析出が抑制されることを示している。

第4章「Investigation of Catalytic activity of Ni@Silicalite-1」では、含浸法により Ni を固定化した Ni/S-1 触媒とゼオライトへ Ni 微粒子を内包させた Ni@S-1 触媒に対して、500°C~800°C の温度範囲で ESR 反応を実施し、触媒反応活性を比較している。今回検討しているすべての反応温度範囲において、Ni@S-1 は Ni/S-1 触媒と比較し、600°C 以下の低反応温度域におけるエタノールの脱水素、C-C 結合の開裂と水蒸気改質の各触媒機能、固体炭素析出抑制において、優れた性能を示すこと、および 700°C 以上の高温度域において優れた耐熱安定性を示すことを明らかにしている。

第5章「Conclusion and recommendations」では、本研究により得られた成果を総括すると共に、今後の課題や展望について言及している。

これを要するに、本論文では、ESR 反応に対して炭素析出抑制能と熱凝集抑制能を示すゼオライト内包 Ni 微粒子触媒の調製法、ならびに ESR 反応における触媒劣化抑制に関する基礎的知見を得たものであり、工学上ならびに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。