

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ゼオライトの低環境負荷型合成手法の開発と応用に関する研究
Title(English)	Study on development of environmentally-benign method for zeolite synthesis
著者(和文)	陸遥
Author(English)	Yao Lu
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12741号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:横井 俊之,山中 一郎,多湖 輝興,谷口 泉,和田 裕之
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12741号, Conferred date:2024/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

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	陸 遥	
論文審査 審査員		氏 名	職 名		
	主査	横井 俊之	准教授	和田 裕之	准教授
	審査員	山中 一郎	教授		
		多湖 輝興	教授		
	谷口 泉	准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「ゼオライトの低環境負荷型合成手法の開発と応用に関する研究」という題目で、低環境負荷化につながるゼオライト合成手法の新規開発および改良に関する研究が行われており、全6章で構成されている。

第1章「序論」では、ゼオライト物質について概説した後、本研究で対象としている TUN 型ゼオライトと CHA 型ゼオライトの特性などを紹介し、それらの合成手法およびそれらのプロセスにおけるそれぞれの環境負荷に関する背景について説明し、本論文研究の目的と位置付けを述べている。

第2章「MWW 型ゼオライトを原料とした TUN 型ゼオライト短時間合成法の開発」では、TUN 型ゼオライトの合成手法の改良に取り組んでいる。従来法である非晶質原料を用いた TUN 型ゼオライトの合成では中間相として MWW 型ゼオライトを経由して TUN 型ゼオライトが結晶化する点に着目し、MWW 型ゼオライトを原料とした“ゼオライト転換法”による TUN 型ゼオライトの合成手法の開発に取り組んでいる。ゲル組成、水熱合成条件、MWW 型ゼオライトの物性、種結晶の影響などを精査し、合成時間を従来法の 14 日から最短で 2 日まで短縮できる新しい合成手法の開発に成功している。更に開発した新しい合成手法では有機構造規定剤 (OSDA) の使用量を低減できることも見出し、TUN 型ゼオライトの低環境負荷化を達成している。

第3章「MFI 型ゼオライトを原料とした TUN 型ゼオライト短時間合成法の開発」では、TUN 型ゼオライトと共通する骨格パーツ (Composite Building Units (CBUs)) を持つ MFI 型ゼオライトを原料としたゼオライト転換法による TUN 型ゼオライトの合成を検討している。この場合では、中間相として MWW 型ゼオライトを経由して TUN 型ゼオライトが合成されるが、MWW 型から TUN 型ゼオライトまでに要する時間が約 1/3 に短縮されること、得られる TUN 型ゼオライトの粒子サイズが従来法の約 1/10 の 200-300 nm と小さくなることを見出している。結晶化過程を詳細に追跡することにより、TUN 型ゼオライト共通する CBUs を有する MFI 型ゼオライトから供給される骨格パーツが TUN 型ゼオライトの核発生を促進したことが要因だと考察している。また、ゼオライト転換法により合成した TUN 型ゼオライトの酸触媒特性についても評価し、従来法と同等の性能を有することも確認している。

第4章「もみ殻シリカを用いた CHA 型ゼオライトの低環境負荷合成手法の開発および Cs⁺と Sr²⁺の吸着除去への応用」では、CHA 型ゼオライトの合成原料に着目し、廃棄物であるもみ殻炭 (RHC) をシリカ源とした CHA 型ゼオライトの低環境負荷合成手法の開発に取り組んでいる。RHC に含有するシリカ成分をアルカリ溶液用いて抽出し、CHA 型ゼオライトの合成原料に用いたところ、Si/Al 比が 5~20 の広範囲にわたる母ゲルから CHA 型ゼオライトを合成できることを見出し、さらに用途展開として、Cs⁺と Sr²⁺の吸着特性の評価を行っており、従来法で調製した CHA 型ゼオライトよりも優れたイオン交換性能を有することを見出している。

第5章「OSDA 等の間接的使用を抑えた CHA 型ゼオライトのグリーン合成手法の開発および DTO 反応への応用」では、従来法で調製した CHA 型ゼオライトを原料に用いるのではなく、RHC を原料に用いて調製される「CHA-green」を種結晶としても利用可能なことを見出している。RHC を原料として調製した CHA 型ゼオライトでは、Al ペア種と呼ばれる近接した骨格内 Al 原子の量が少ないことが特徴であり、その結果、ジメチルエーテルからオレフィンを得る反応、DTO (Diethyl ether to olefin) 反応の寿命が従来法で調製した同程度の Al 含有量である CHA 型ゼオライトよりも約 1.5 倍延びることも見出している。

第6章「総括」では、本論文の各章で得られた結果の総括が記載されている。第2章~5章にかけて述べられているように TUN 型ならびに CHA 型ゼオライトの低環境負荷型合成手法の開発に成功し、合成機構や触媒能・イオン交換能に関する検討も行っている。これを要するに、本論文はゼオライトの低環境負荷型合成手法の開発と応用について述べたものであり、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。