

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Studies on the synthesis and application of metal-containing MWW-type zeolites
著者(和文)	YANGWillie
Author(English)	Willie Yang
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12730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,多湖 輝興,山口 猛央,松本 秀行,原田 琢也
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12730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	YANG Willie	
論文審査 審査員		氏名	職名		
	主査	横井 俊之	准教授	松本 秀行	准教授
	審査員	山口 猛央	教授		
		多湖 輝興	教授		
		原田 琢也	准教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Studies on the synthesis and application of metal-containing MWW-type zeolites」という題目で、金属含有 MWW 型ゼオライトの調製と触媒応用に関する研究が行なわれており、全 4 章で構成されている。

第 1 章「Introduction」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 MWW 型ゼオライト、ゼオライトの触媒作用について、また本研究の目的反応であるアンモキシメーションや二酸化炭素水素化反応について説明し、本論文の研究の位置付けを述べている。

第 2 章「Liquid-phase ammoxidation of cyclohexanone carried out by silica nanosphere-modified Ti-MWW zeolite」では、シクロヘキサノンアンモニアと過酸化水素で直接オキシム化するアンモキシメーション用の Ti 含有 MWW 型ゼオライト触媒に関して、耐久性向上を目的としたシリカナノ粒子コーティング処理を検討している。アンモキシメーションは塩基性条件で進行するため、反応中のゼオライト触媒の高耐久化が課題となっていた。シリカナノ粒子コーティング処理条件を精査することで、シリカナノ粒子コーティング処理により 90% 超の高いシクロヘキサノンオキシム選択率を維持した状態での高耐久化を達成している。また、反応温度の影響の検討も行い、転化率、選択率、そして過酸化水素の有効利用率の観点から反応条件の最適化を達成している。さらに、反応後の触媒の構造解析からシリカナノ粒子コーティング処理により活性点である骨格内 Ti 種の溶出が抑制されていることを見出している。この他、回分式反応装置に加え、流通式反応装置での検討も行い、開発したシリカナノ粒子コーティング処理が流通式反応装置でも有効であることを見出している。これらの結果はアンモキシメーション触媒プロセスの効率化、グリーン化において、有用な知見に繋がる。

第 3 章「The CO₂ activation over Pd-containing MCM-22 zeolite and the influence of countercations in the zeolite framework」では、近年注目されている二酸化炭素水素化反応によるメタノール合成反応の触媒反応機構の解明に取り組んでいる。二酸化炭素水素化反応によるメタノール生成の反応機構としては、一酸化炭素を経由した逆水性ガスシフト反応を経由するルートと、ギ酸塩とメトキシ種の生成を経由したルートなどが提案されている。今回、モデル触媒として Pd 担持 MWW 型ゼオライト触媒を用い、触媒反応機構の解明にはフーリエ変換赤外分光法 (FT-IR) を採用している。特にゼオライト骨格内の対カチオン (Na⁺, H⁺) が二酸化炭素の吸着挙動とその後の活性化プロセスに及ぼす影響について検討している。まず各種プローブ分子を用いたその場分光法 (*in-situ* FT-IR) による触媒の精密構造解析を行っている。さらに、熱触媒反応に対応した拡散反射赤外分光法 (Diffuse reflectance infrared Fourier transform spectroscopy: DRIFTS) を取り入れた解析を行っている。その結果、H⁺ が対カチオンの場合、ギ酸塩とメトキシ種の生成を経由したルートでメタノールが生成することを明らかにしている。一方で、Na⁺ が対カチオンの場合、二酸化炭素とゼオライト骨格の吸着が強く、その後の活性化プロセスが起り難いことを見出している。これらの成果は、高い二酸化炭素水素化反応活性を有する触媒の開発において、有用な知見に繋がる。

第 4 章「Summary」では研究全体を総括しており、各々の章から得られた結果が、MWW 型ゼオライト上に導入された触媒活性金属種の構築方法や構造特性が触媒活性にどのような影響を与えるかについて考察されている。これを要するに、本論文は高活性ゼオライト触媒の開発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。