

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Modification of ZSM-5 Zeolite and Its Catalytic Properties
著者(和文)	KARIMTahta Muslim
Author(English)	Tahta Muslim Karim
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12873号, 授与年月日:2024年9月20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12873号, Conferred date:2024/9/20, 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	Tahta Muslim Karim		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	横井 俊之	教授	審査員	原田 琢也	准教授
	審査員	山口 猛央	教授			
		多湖 輝興	教授			
		松本 秀行	教授			

### 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Modification of ZSM-5 Zeolite and Its Catalytic Properties (ZSM-5 ゼオライトの変性と触媒特性)」という題目で、MFI 型アルミノシリケートゼオライトである ZSM-5 の階層構造化による変性が物性、触媒活性に与える影響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「General Introduction (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 ZSM-5 ゼオライトの特性などを紹介し、特に骨格内 Al 原子の位置制御の重要性、ならびに粒子のナノサイズ化やメソ細孔導入による階層構造化および触媒応用について説明し、本論文研究の目的と位置付けを述べている。

第 2 章「Synthesis of hierarchical ZSM-5 intracrystalline with the controlled aluminum distribution (Al 原子位置を制御した ZSM-5 の階層構造化)」では、ゼオライト骨格の電荷バランスに着目し、Na カチオンの有無による Al 位置制御を指向しながら、メソ細孔形成誘発剤として界面活性剤である Cetyltrimethylammonium bromide (CTAB) 存在下、ZSM-5 の結晶化を検討している。まず、CTAB 存在下での ZSM-5 結晶化工程において、結晶化時間を 144 時間とすることで約 2 nm のメソ細孔を有する均質な ZSM-5 の調製に成功している。骨格内 Al 原子位置に関しては、階層構造を有しない ZSM-5 の場合とは異なり、Na カチオンを共存させないで結晶化させた場合に、比較的狭いチャンネル内に優先的に分布され、Na カチオンを共存させて結晶化させた場合に広いインターセクションに優先的に分布されることを見出している。また調製した ZSM-5 の触媒特性をメタノール転換反応で検証し、階層構造化による触媒寿命の向上も確認している。今回、階層構造を有し、かつ骨格内 Al 原子の分布を制御した ZSM-5 ゼオライト触媒の調製にはじめて成功したといえる。

第 3 章「The impact of synthesis conditions and mesopore concentration on the aluminum distribution in the hierarchical ZSM-5 intracrystalline (合成条件ならびにメソ細孔形成誘発剤の濃度が階層構造型 ZSM-5 ゼオライトの Al 原子位置に及ぼす影響)」では、第 2 章の内容をさらに深化させ、合成条件ならびにメソ細孔形成誘発剤である CTAB の濃度の影響を精査している。まず、結晶化温度は Al 原子位置のみならず、階層構造にも影響を与えることを見出している。具体的には結晶化温度が高くなるにつれて、Al 原子は高分散状態から近接したペア種の状態へと変化していくことを明らかにしている。また、ゼオライト合成ゲルの pH はシリケート種の縮合反応、それに続くゼオライト骨格形成に影響することに着目し、pH の影響を精査している。その結果、未調整の場合 pH は 14 程度であるが、酢酸を微量添加し 12 程度に調整することで、ZSM-5 の結晶構造を維持したまま、階層構造化が促進されることを見出している。さらにメソ細孔形成誘発剤である CTAB の濃度の影響検討も行っている。合わせて階層構造化ならびに Al 原子位置が触媒性能に及ぼす影響も詳細に検討している。メタノール転換反応、ヘキサン接触分解反応などを実施し、Al 原子位置や階層構造の導入が触媒寿命や生成物の選択率に及ぼす影響について系統的に検討している。これらの成果はマイクロ細孔のみを有するゼオライトの階層構造化において有用な知見に繋がる。

第 4 章「Summary (総括)」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、ZSM-5 ゼオライトの階層構造化が結晶構造、骨格内 Al 原子の位置、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、本論文は階層構造を有し、かつ骨格内 Al 原子の位置を制御した ZSM-5 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。