

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ゼオライトに固定化した金属微粒子の耐熱安定性向上に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	後藤秀和
Author(English)	Hidekazu Goto
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12875号, 授与年月日:2024年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:多湖輝興,関口秀俊,山中一郎,下山裕介,横井俊之
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12875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

(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	後藤 秀和	
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	教授
	審査員	関口 秀俊	教授		
		山中 一郎	教授		
下山 裕介		教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「ゼオライトに固定化した金属微粒子の耐熱安定性向上に関する研究」と題して日本語で書かれており、以下の6章から構成されている。

第1章「序論」では、本研究の背景として、金属微粒子触媒の工業利用とその実用化に求められる特性について概説した後、本研究で対象とするゼオライト担持金属微粒子触媒について、ゼオライトの結晶構造、多孔性、イオン交換性、固体酸性などの諸特性、およびゼオライトへの金属微粒子の固定化法と触媒性能について説明している。そして、ゼオライト粒子内に金属微粒子が固定化された内包構造触媒について、金属微粒子の触媒性能と耐熱安定性について説明し、本研究の目的と意義、および論文の構成を示している。

第2章「Ni 内包 Beta の合成」では、Beta 型ゼオライト粒子内に Ni 微粒子が内包された触媒(Ni@Beta)の調製を検討している。Ni フィロシリケート固体粉末を Ni 源とする調製法により、Beta 型ゼオライトの結晶間空隙に Ni ナノ粒子が固定化された、Ni@Beta の合成に成功している。含浸法で調製した Ni/Beta の電子顕微鏡観察から、Ni 粒子サイズが 3~4 nm 程度の Ni 微粒子が Beta 型ゼオライト内に固定化されていることを確認している。

第3章「Ni 内包 Beta の炭化水素(HC)トラップへの適用」では、耐熱安定性試験とトルエン昇温脱離(トルエン TPD)試験により、Ni@Beta の HCトラップ触媒としての適用性を評価している。その結果、空气中 900 °C の処理後においても、Beta 型ゼオライトに由来する細孔表面積が維持されていること、および Ni がナノサイズの微粒子状態を維持していることから、Beta 型ゼオライト粒子内に Ni 微粒子を固定化させた Ni@Beta は、耐熱安定性に優れた触媒であると結論している。さらに、トルエン TPD 試験の結果、Ni が微粒子状態で Beta 型ゼオライト粒子内に存在することで、900 °C の熱処理後においても高いトルエンの吸脱着能を示し、3元触媒(TWC)が排ガス浄化能を示す 250°C 以上までトルエンを保持できることを実証している。これにより、高い熱負荷環境において HC を吸着させる必要がある自動車用排ガス浄化触媒としての Ni@Beta の利用可能性を示している。

第4章「Ag@MFI の合成」では、MFI 型ゼオライト粒子内に Ag 微粒子が内包された触媒(Ag@MFI)の調製について、貴金属などのフィロシリケートを形成しない金属をゼオライト粒子内に固定化させる新規調製法として、金属微粒子をあらかじめ担持したシリカゾルを前駆体とし、ゼオライト構造規定剤、Al 源、水を添加した後、水熱合成処理を施す方法を提案している。Ag を高表面積なシリカゾル担体に担持し、同 Ag 担持シリカゾルに水熱処理を施すことで、MFI ゼオライトの結晶化過程で Ag 微粒子がゼオライト粒子内部に固定化された内包構造の形成を確認している。Ag@MFI の Ag 微粒子の耐熱安定性評価は、空气中 750 °C の熱処理によって評価し、熱処理後においても Ag が微粒子状態でゼオライト粒子内に固定化されていることを確認している。

第5章「Ag 内包 MFI のエタン脱水素反応への展開」では、Ag@MFI の安定性をより実用的な条件下で検証するため、750 °C でのエタンの脱水素芳香族化反応を実施している。Ag@MFI へ Fe を担持した Fe/Ag@MFI は、Fe 粒子上でのエタンの脱水素反応、酸点上での生成エチレンの重合、Ag 微粒子上での環化・芳香族化が逐次的に進行し、芳香族が生成することを確認している。750°C の反応後においても、Fe/Ag@MFI は Ag 微粒子が内包された構造を維持しており、高温条件下においても触媒として利用可能であることを確認している。

第6章「結論」では、研究全体を総括しており、成果と今後の展望を述べている。

これを要するに、本論文は、Ni フィロシリケートを前駆体とした Beta 型ゼオライト内包 Ni 微粒子触媒(Ni@Beta)、および Ag 担持シリカゾルを前駆体とした MFI 型ゼオライト内包 Ag 微粒子触媒(Ag@MFI)の調製法、および高温条件下での耐熱安定性と触媒機能を評価することを通じ、金属微粒子をゼオライト粒子内に固定化した耐熱安定性に優れた内包構造触媒の開発について述べたものであり、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