

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	結晶化機構に基づくCON型ゼオライトの新規合成手法の開発に関する研究
Title(English)	Study on the development of novel crystallization method of CON-type zeolite based on crystallization mechanism
著者(和文)	澤田真人
Author(English)	Masato Sawada
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京科学大学, 報告番号:甲第317号, 授与年月日:2025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,松本 秀行,黒木 秀記
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Institute of Science Tokyo, Report number:甲第317号, Conferred date:2025/3/26, 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

(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	澤田 真人	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	横井 俊之	教授	黒木 秀記	准教授
	審査員	山中 一郎	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「結晶化機構に基づく CON 型ゼオライトの新規合成手法の開発に関する研究」という題目で、CON 型アルミノポロシケートゼオライト (CIT-1) の合成と酸触媒活性に与える影響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 CON 型ゼオライトの合成方法、メタノールからのオレフィン合成反応 (MTO 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「CTAB 共存下での CON 型ゼオライトの合成と MTO 活性評価」では、CIT-1 の結晶化における機能面の制御を目的に、界面活性剤である Cetyltrimethylammonium bromide (CTAB) 存在下、CIT-1 の合成に取り組んでいる。その結果、合成ゲルに CTAB を共存させることにより結晶成長を抑制できること、また、結晶成長段階で CTAB が結晶成長界面と相互作用することにより、A1 種のゼオライトへの取り込みを相対的に遅くし、ゼオライト結晶の外表面に存在する酸点を抑制できることを見出している。このように調製した CIT-1 は methanol to olefin (MTO) 反応において、CON 型ゼオライトに特徴的な高いプロピレン選択性と長寿命を示すことを確認している。

第 3 章「高い A1 含有量を示す CON 型ゼオライトの新規合成法の開発」では、これまでに先例の無い高い A1 含有量を示す CON 型ゼオライトの合成に取り組んでいる。ゼオライトの結晶化を容易にする水熱合成法の一つであるゼオライト転換法に着目し、目的とする CON 型ゼオライトと共通の Composite Building Units (CBU) を有する Beta, MFI 型ゼオライトを出発原料に用いた結果、従来法では下限 Si/A1 原子比 100 程度に対して 2.5 倍の A1 を含んでいる Si/A1 原子比 40 の CON 型ゼオライト合成に成功している。次に、更なる高 A1 含有 CON 型ゼオライトの合成を目指し、合成温度や合成時間を調査するのに加え、用いる CBU の種類について検討を実施している。Beta と MFI 型ゼオライトを混ぜて用いる戦略をとったところ、Si/A1 原子比 20 の CON 型ゼオライトの合成に成功している。ここで開発した複数種のゼオライトを出発原料に用いたゼオライト転換法は CON 型以外のゼオライトにも適用できると考えられており、今後の展開が期待される。

第 4 章「様々な種結晶を用いて合成した CON 型ゼオライトの結晶化過程の考察」では、第 3 章で得られた Si/A1 原子比 20 の CON 型ゼオライトを含む、Si/A1 原子比や骨格構造が異なる種結晶を用いて CIT-1 の合成を行い、結晶化過程や得られるゼオライトの物性面に与える影響を調査している。CON 型ゼオライトを種結晶として用いることで、原料由来の核を起点とした結晶化を可能とし、速やかに結晶化が開始されること、さらに種結晶の A1 含有量が高いほど結晶化速度が高くなることを見出している。これらの成果は今後のゼオライト合成における種結晶の選択において有用な知見に繋がる。

第 5 章「高い A1 含有量を示す CON 型ゼオライト種結晶を用いた影響の検討」では、第 3 章で得られた Si/A1 原子比 20 の CON 型ゼオライトを種結晶とした CIT-1 の結晶化過程を詳細に検討している。A1 含有量が高い種結晶は耐アルカリ性が高く、水熱合成初期においても多くの核を残存させることができ、それらが均一に結晶成長することで粒子径分布の揃った微粒子が形成されたと考察している。

第 6 章「総括」では、研究全体を総括しており、各章で得られた結果をもとに CON 型ゼオライトの新規合成手法を提案するとともに今後の展望を述べている。

以上を要するに、本論文では MTO 反应用触媒として有望な CON 型ゼオライトの新規合成法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。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東京科学大学リサーチポジトリ (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。