

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	メタン活性化用金属含有ゼオライト触媒の設計と合成
Title(English)	Design and synthesis of metal-containing zeolite catalysts for methane activation
著者(和文)	中村研吾
Author(English)	Kengo Nakamura
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321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,館山 佳尚,森 伸介
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Institute of Science Tokyo, Report number:甲第321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

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	中村 研吾	
		氏名	職名		氏名	職名
論文審査 審査員	主査	横井 俊之	教授	審査員	森 伸介	准教授
	審査員	山中 一郎	教授			
		多湖 輝興	教授			
		館山 佳尚	教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「メタン活性化用金属含有ゼオライト触媒の設計と合成」という題目で、メタンからメタノールを経由した低級炭化水素生成を可能とする金属含有 CHA 型ゼオライト触媒プロセス開発に関する研究が行われており、全 5 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 CHA 型ゼオライトの合成手法、骨格内 Al 原子の位置制御について説明している。加えてメタンを原料とする触媒反応や N_2O を酸化剤として用いたメタン酸化反応プロセスを説明し、本論文の目的と位置付けを述べている。

第 2 章「メタンからメタノールを経由した炭化水素生成反応を可能にする Cu 含有 CHA 型ゼオライト触媒の開発と Al 分布の影響」では、Cu 含有 CHA 型ゼオライトを触媒に、 N_2O を酸化剤に用いたメタン酸化反応プロセスに取り組んでいる。まず、Cu 含有量の影響を調査し、Cu 含有量が少ない触媒ではメタン転化率は低下するものの低級炭化水素が選択的に生成することを見出している。次に、Na イオン交換によって酸点を被覆したサンプルを触媒として用いた検討により、ゼオライト中のブレンステッド酸点が炭化水素生成には重要であることを明らかにしている。また、Cu 含有 CHA 型ゼオライトの骨格内 Al 原子分布の影響を調査し、孤立した Al 種の割合が高い触媒がメタン転換において有利であることを見出している。赤外分光法を用いた触媒活性種の解明にも取り組んでおり、孤立した Al 種上に導入した Cu 種は一価 (Cu⁺種) として存在し、この Cu⁺種がメタンの活性化には重要であることを見出している。

第 3 章「炭化水素生成量の向上を目的とした Fe 含有 CHA 型ゼオライト触媒の検討」では同反応における炭化水素生成量の向上を目的とした、Fe 含有 CHA 型ゼオライト触媒の検討を行っている。Fe カチオンの導入によりメタン転化率は 15% 以上を示し、低級炭化水素収率約 5% を達成している。さらに、骨格内 Al 原子分布の異なる CHA 型ゼオライト触媒を用いた検討も行い、第 2 章と同様に孤立した Al 種の割合が高い CHA 型ゼオライト触媒が高い活性を示すことを見出している。紫外・可視分光分析ならびに固体核磁気共鳴分析により、導入した Fe カチオンや CHA 型ゼオライトの構造解析を行い、孤立した Al 種は骨格内 Fe 種の形成に有利に働くこと、ゼオライトの構造安定性向上に寄与することを見出し、これらの要因が高い触媒性能の発現に繋がったと考察している。

第 4 章「メタン転換反応における金属含有ゼオライト触媒の分光学的解析」では赤外分光法を用いて、Fe 含有 CHA 型ゼオライト触媒によるメタン転換反応の反応機構解析を行っている。 N_2O をプローブ分子として用いた赤外分光分析ならびに紫外・可視分光分析より、Fe カチオン種が N_2O の分解を通じて活性酸素種を生成しており、これがメタン転換反応の活性部位として機能していることを見出している。さらに、メタンをプローブ分子として用いた赤外分光分析より、Fe カチオンの導入によりメタンに対する吸着能が向上していることを見出し、Fe 含有 CHA 触媒の優れた反応性はこの吸着能の高さに起因すると考察している。また、メタノールをプローブ分子として用いた赤外分光分析より、Fe カチオン種はメタノール転換にはほとんど影響を及ぼしていないことを明らかにしている。すなわち、メタン転換反応とメタノール転換反応が単一の触媒で完全に独立して進行していること、Fe カチオン種は N_2O を分解することで安定的に活性酸素種を生成し、メタンの活性化にのみ寄与することを見出している。

第 5 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メタンからメタノールを経由した炭化水素生成を目的とした触媒反応プロセス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、本論文ではメタンの部分酸化反応による有用化学品への触媒転換プロセス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。