

学位論文及び審査結果の要旨

氏名	なかざわ なおと 中澤 直人
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	工府博甲第 576 号
学位授与年月日	平成 31 年 3 月 26 日
学位授与の根拠	学位規則(昭和28年4月1日文部省令第9号)第4条第1項及び横浜国立大学学位規則第5条第1項
学府・専攻名	工学府 機能発現工学専攻
学位論文題目	濃厚シリケート溶液から出発するゼオライト合成法の開発と新規ゼオライト合成 Development of synthetic method starting from concentrated silicate solution and synthesis of novel zeolite
論文審査委員	主査 横浜国立大学 教授 窪田 好浩 横浜国立大学 教授 大山 俊幸 横浜国立大学 教授 藪内 直明 横浜国立大学 教授 吉武 英昭 横浜国立大学 准教授 稲垣 怜史

論文及び審査結果の要旨

ゼオライトは結晶性アルミノシリケートであり、触媒や吸着剤、イオン交換剤などとして工業的に幅広く用いられている。細孔構造を決めるゼオライト骨格とその Si/Al 組成がゼオライトの応用特性を決めるうえで重要となる。約 0.3 nm の細孔を有する小細孔ゼオライトは methanol-to-olefins 反応や、NO_x 還元触媒として有用であり、一方で約 0.7 nm の細孔を有する大細孔ゼオライトは嵩高い基質を用いる場合や液相反応触媒として有用である。Si/Al 比がおよそ 5 未満の低シリカゼオライトは高いイオン交換容量のため吸着剤として優れている。一方で Si/Al がおよそ 20 以上の高シリカゼオライトは高い水熱安定性を有するために固体酸触媒として優れている。また、これらの中間領域である Si/Al が 5~20 の領域ではイオン交換容量と水熱安定性を両立できることから、NO_x 還元触媒としての用途が近年注目されている。今日までに 245 種類ものゼオライト骨格が知られているが、実際に応用されるのは FAU 型ゼオライト、MFI 型ゼオライトといった古典的なゼオライトに限られている。近年合成される新規ゼオライトは高価な有機構造規定剤 (organic structure-directing agent; OSDA) を原料として用い、得られる組成は高 Si/Al 比になりがちであることや十分な水熱安定性を有していないことなどの理由から、実用的でないものが多い。また、生成物の Si/Al 比は原料カチオンの電荷密度により主として制約されるため、一般に特定のゼオライト骨格構造について自由な Si/Al 組成で結晶化させることはできない。そこで従来合成法から脱却し、既存 OSDA のポテンシャルを最大限引き出すことで新規ゼオライトを得る方法の開

発に着手した。本研究では特に、濃厚シリケート溶液を用いた新しい合成法またはゼオライト前駆体を原料として用いた合成法に関して中心に検討し、新規ゼオライトを得ることを目的とした。本論文は、第 1 章の「緒言」、第 2 章「新規*STO 型ゼオライトの開発」、第 3 章「高シリカ SSZ-39 の直接合成」、第 4 章「TEBOP²⁺を用いた中シリカ AFX 型ゼオライトの合成」、第 5 章「Me₂Pr₂N⁺を用いた新規骨格ゼオライト YNU-5 の合成」、そして第 6 章「結論」から構成される。

以上、本論文は、「濃厚シリケート溶液から出発するゼオライト合成法の開発と新規ゼオライト合成 (Development of synthetic method starting from concentrated silicate solution and synthesis of novel zeolite)」と題し、新規骨格を有するゼオライトを創製するための革新的な方法論の開発につながる成果について記述したものであり、博士 (工学) の学位論文として十分に価値があるものと認める。

平成 31 年 2 月 5 日午後 3 時 00 分より、化工安工棟 (N8-5) 111 室において学位論文発表会を開催した。論文の内容について提出者本人が約 40 分の口頭発表と約 40 分の質疑応答を行った。その直後、同日午後 4 時 30 分より化工安工棟 111 室において審査委員全員出席のもと審査委員会を開催し、口頭発表及び質疑応答の内容について慎重な審議を行った。その結果、本論文は博士学位論文として十分な内容を有していると認められたため、合格と判定した。また申請者は、学位論文の審査における質疑応答により、博士論文に関連する分野の科目について博士(工学)の学位を得るにふさわしい学力を有すると判定した。著作権保護への配慮は十分である。外国語の学力に関しては、本論文および学術雑誌に公表された関連論文がすべて英語で書かれていることから、英語に関する能力は十分であると判定した。また、修了に必要な単位は取得済みである。

以上により最終試験は合格であると判定した。