

## 論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 ( 工 学 )	氏名	本田 昂太郎
学位授与の要件	学位規則第4条第1・2項該当		
論文題目			
Efficient syntheses of functional inorganic materials by interzeolite conversion method (ゼオライト転換法による機能性無機物質の効率的な合成)			
論文審査担当者			
主 査	教 授	佐野 庸治	
審査委員	教 授	塩野 毅	
審査委員	特任教授	奥山 喜久夫	
審査委員	准 教 授	定金 正洋	
〔論文審査の要旨〕			
<p>ゼオライトは、触媒、吸着材、分離膜等多岐にわたり工業的に使用されている。しかし、合成に長時間を有することや原料である有機構造規定剤の使用により、製造コストが高くなることが課題視されている。一般にゼオライトは、アモルファスアルミノシリケート水性ゲルを用いて合成されるが、ゼオライトを出発原料に用いたゼオライト転換法を用いることで、目的ゼオライトの純度や結晶化速度を向上させることができる。また、ゼオライトの純度や結晶化速度を向上させる手法として、出発水性ゲル中に種結晶を添加する方法が提案されている。そこで本論文では、ゼオライト転換法へ3つの合成法、種結晶添加合成、種結晶添加有機構造規定剤フリー合成および種結晶有機構造規定剤フリー合成を適用し、効率的な機能性無機材料の合成について検討した。第1章では、ゼオライトの定義、種類、特性、応用および合成について概観し、本研究の目的を明らかにした。第2、3、4章にて、種結晶添加ゼオライト転換法の検討を行った。有機構造規定剤を用いた FAU-*BEA ゼオライト転換に種結晶を添加したところ、大幅な結晶化時間の短縮に成功し、種結晶を添加することで FAU ゼオライトの分解により生成した局所的秩序構造を有するナノパーツが種結晶へ取り込まれることを明らかにした。このことは、種結晶への取り込みに適したナノパーツが生成できれば、有機構造規定剤を使用しなくともゼオライト転換が可能であることを示している。詳細な合成条件の検討から、有機構造規定剤フリーでの FAU-*BEA ゼオライト転換に成功した。また、種結晶の種類を変化させ、有機構造規定剤フリーFAU-LEV および FAU-MAZ ゼオライト転換にも成功した。第5章では有機構造規定剤フリーゼオライト転換における出発原料と目的生成物の構造類似性について検討を行った。FAU-*BEA, FAU-LEV および FAU-MAZ ゼオライト転換では転換条件が類似しており、FAU ゼオライトから生成するナノパーツには大きな違いはないと考えられる。出発ゼオライトと生成した各ゼオライトの構造から、共通して存在するハシゴ状の4員環が転換過程に関与していることを明らかにした。また、種結晶-有機構造規定剤フリーFAU ゼオライト転換を行ったところ、4員環中心の GIS および LTL ゼオライトが得られたのに対し、アモルファス出発原料からは生成物は得られなかった。一方、5員環を有する*BEA ゼオライトを出発原料とし転換を行ったところ、5員環で構造が形成されている MFI ゼオライトを得ることができた。以上のことから、出発ゼオライトの骨格構造と類似した構造を有するゼオライトを有機構造規定剤フリーで効率良く合成できることを明らかとした。第6章では、種結晶有機構造規定剤フリーでの CHA-LEV ゼオライト転換に成功した。CHA と LEV ゼオライトの骨格構造は類似しているが、骨格密度は LEV ゼオライトの方が大きく、熱力学的には LEV ゼオライトの方が安定である。すなわち、構造類似性を利用したゼオライト転換法により、熱力学的に不安定なゼオライトを速度論的に得ることが可能であることを明らかとした。第7、8章では、新規層ケイ酸塩 HUS-1 の合成、構造解析および応用検討を行った。</p> <p>本研究では、ゼオライト転換法を用い、種結晶添加や有機構造規定剤フリーの合成条件を検討することで、様々なゼオライトおよび新規層状ケイ酸塩の効率的な合成に成功した。これらの成果は、工業的に使用されている機能性無機物質のより効率的な合成を示すだけでなく、合成が困難なことで現在使用されていない無機物質の応用の拡大を示しており、高く評価できる。よって、本論文は博士(工学)の学位を授与するに値するものと認める。</p>			

備考：審査の要旨は、1,500字以内とする。