

審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 武脇 隆彦

本論文は「出発反応混合物に着目した新規ゼオライト合成とその応用 (Novel zeolite syntheses focused on starting reactant mixtures and their application)」と題し、新規なゼオライト合成の手法の確立とその応用を研究し結果をまとめたものである。本文は日本語で 6 章にわたり書かれている。

第 1 章では、研究背景と研究目的がまとめられた。ゼオライト合成に関して、その合成方法により、生成するゼオライトも様々となり、その構造、組成、性質などが異なる場合が多いが、それらの関連については必ずしも詳細が明らかとなっていない。本研究が、新規ゼオライト合成方法により、新しい特性を持ったゼオライトを合成し、さらに新しい応用分野を開拓することを目的としたことを述べた。より具体的には、ゼオライト合成における出発反応混合物に注目して研究を行うことを目的とすることが的確に記述された。

第 2 章ではベータ型ジンコシリケート CIT-6 の合成と種々のベータ型ゼオライトへの転換の研究結果をまとめた。ヘテロ原子を利用するゼオライト合成方法について、Zn を含有するジンコシリケートゼオライトを研究したことがまとめられた。骨格に Zn を含有する新規なベータ型ゼオライトの合成に成功し CIT-6 (California Institute of Technology Number-6) と名付けた結果が述べられた。CIT-6 は LiOH をアルカリ金属源として用い、Zn を含む透明溶液の出発混合物から合成でき、VPI-8 生成過程の途中段階で結晶化する特異なゼオライトである。Zn が骨格内に導入されていることを ^{29}Si MAS-NMR を用いることにより明らかにしたり、CIT-6 は酢酸水溶液等による酸性水溶液で処理することにより、OSDA や Zn など容易に抽出できる結果がまとめられた。これらの結果から、CIT-6 を前駆体とすることにより、下図に示すような吸着性能や触媒性能の異なる、種々のヘテロ原子を含有するベータ型ゼオライトが合成できることを示した。

第 3 章はメソポーラスシリカを原料としたベータ型ゼオライトの合成を述べた。表面水酸基が多く、反応性に富むと考えられるメソポーラスシリカを原料とした出発反応混合物を用いた新しい合成手法の研究結果を報告した。TEAOH を含浸させた Si-MCM-41 等の Si-メソポーラスシリカを原料とすることにより、

Si-ベータ型ゼオライトの合成に成功した。Ti、Al、B、V、Zr、Zn 等のヘテロ原子含有ベータ型ゼオライトについても、それらのヘテロ原子含有するメソポーラスシリカから同様な方法で合成することができた。これらの結果から、メソポーラスシリカが特異な物性を有する種々のゼオライト合成の有望な原料となることを示した。

第4章では DABCO 誘導体を OSDA としたゼオライトの合成をまとめた。ゼオライト合成における出発反応混合物として、あまり研究されてこなかったポリマーの有機構造規定剤(Organic Structure Directing Agent, OSDA)について、ポリマーの元となるモノマーも含めて、特に 1,4-diazabicyclo[2,2,2]octane (DABCO)の一連の誘導体について種々の条件下での合成研究を行うことにより、結果と新規ゼオライトの合成の可能性との関連について調べた。

第5章では AIPO 型ゼオライトの水蒸気吸着特性とその応用をまとめてある。アルミノフォスフェートのゼオライトの水蒸気吸着性に着目し、アルミノフォスフェートの構造、組成などとの相関を調べ、またその特性要因についても研究した。また、未利用低温熱源を利用した吸着ヒートポンプ用吸着材についても検討した。AIPO 型のゼオライトは、構造の効果、ヘテロ原子の効果等を組み合わせることにより、異なる吸着等温線が得られ、それらの相関について明らかにした。比較的疎水的な構造から親水的な構造の水和結晶への転移への平衡状態である、水-ゼオライト間の水素結合ネットワークの形成過程が存在するため、AIPO 型ゼオライトの構造、組成等を制御することにより低相対湿度領域において所望の立ち上がり相対湿度を持つような AIPO 型ゼオライトを設計できることを示した。

最後に第6章では結論と今後の展望を述べた。本論文では、出発反応混合物に着目して、種々のゼオライト合成手法を開拓し、それにより、新規な、あるいは特異な性能を持つゼオライトが合成できることを示し、将来展望について個人の意見もまとめられた。

以上のように本論文においては、これまで合成できなかった、簡単な OSDA からの pure シリカゼオライトが合成可能になり、ポスト処理により種々のヘテロ原子含有ゼオライトへ変換することが可能になることが示唆された。あるいは AIPO 型ゼオライトの特異な水蒸気吸着特性についても系統的な研究ができた。これらの知見とこれまで、及びこれからのゼオライト合成検討の結果を結び付けて考えることにより、新たな仮説を作ることが提案された。本論文で述べられた研究成果をベースに、理想的な CO₂ 吸着材など design された新規なゼオライトの合成ができるようになると考えられ、本研究は化学システム工学に大きく貢献するものと判断される。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。