

## 審査の結果の要旨

氏名 ソウグクカンル シベル

ゼオライトは結晶性の多孔質アルミケイ酸塩およびメタロケイ酸塩であり、工業的に広く応用されている重要な材料である。中でも、異なる細孔径を有するマルチポアゼオライトは特異的な形状選択を示す触媒などとしての応用に期待が持たれている。しかしながら、近年盛んに研究がなされているマルチポアゼオライトの合成においては有機構造規定剤 (organic structure-directing agent, OSDA) と呼ばれる複雑な有機物を利用する必要がある。複数段階の反応を経なければ合成できない OSDA も多く、コストや合成プロセスの煩雑さから、実用化の妨げとなってきた。

本博士論文は「Rational Synthesis of Multipore Zeolites Using Simple Organic Structure-Directing Agents by Seed-Directed Method (種結晶添加法によるシンプルな有機構造規定剤を用いたマルチポアゼオライトの合理的合成)」と題し、マルチポアゼオライトの合成において、複雑な OSDA の代替としてシンプルかつ安価な OSDA を用いる手法を開発し示している。本博士論文は以下の Chapters 1-5 から構成されている。

Chapter 1 では、ゼオライト合成における OSDA の役割や、マルチポアゼオライトについて詳しく述べ、既往の研究の問題点を明らかにするとともに他の安価なゼオライト合成法とも比較した上で本研究の位置づけを明確にしている。

Chapter 2 では、MSE 型のアルミノケイ酸塩ゼオライトについて、単純な OSDA であり工業的にも用いられているテトラエチルアンモニウムヒドロキシド(TEAOH)を用いて合成可能であることを示している。この際に、ゼオライトの構造類似性に着目した作業仮説である CBU 仮説を効果的に拡張した上で、\*BEA 型と MSE 型の構造類似性に着目し、合成条件を適切に設定し、種結晶添加法と組み合わせることにより合成を達成している。また、得られた生成物を種結晶として再び使用することが可能であることを示し、高い固体収率も合わせて、他の合成法との比較の結果、本プロセスが最も優れたプロセスとなり得ることを示している。

Chapter 3 においては、Chapter 2 において得られた MSE 型ゼオライトにさらに Zn を導入することを試み、MSE 型ジンコアルミノケイ酸塩の合成に初め

で成功している。この際にも、これまで MSE 型ゼオライトに用いられてきた複雑な OSDA ではなく、シンプルな TEAOH を用いることが可能であることを示している。また、このゼオライトは、Zn を導入していないものと比較してイオン交換容量の増加が見られ、イオン交換剤や多価カチオンを活性点として導入したゼオライト触媒としての応用が期待される。

Chapter 4 では、MTO (methanol-to-olefin) 反応において特異的な長寿命を示すことから触媒としての応用が期待されている CON 型ゼオライトを対象としている。種々の単純なアンモニウムを用いた検討により、TEAOH のみが CON 型ゼオライトを与えることを示し、アルミノボロケイ酸塩の合成に成功している。アルミニウムを骨格に含む CON 型ゼオライトは直接合成が難しいことが知られており、今後触媒としての応用が期待される成果である。この際にも、CBU 仮説の拡張による合成条件設定と種結晶添加法が重要であることを示し、得られたゼオライト内での TEA のコンフォメーションについても知見を得ている。

Chapter 5 では本研究で得られた結果を総括し、安価な OSDA を用いながら、高収率を達成するために重要な事項をまとめている。また、得られた結果から考えられる今後の展望について述べている。

以上、本博士論文は、種結晶添加法と CBU 仮説の拡張を主な手法として、これまで複雑な OSDA が必須であると考えられてきたマルチポアゼオライトについて、MSE と CON という 2 種類を対象とし、シンプルかつ安価な TEAOH を用いた効率的な合成が可能であることを示している。得られた成果は、応用を指向したゼオライト合成化学において重要な指針を与え、今後のさらなる発展を促すとともに、工学的に高い価値を有し、化学システム工学の発展に寄与するところが大きい。

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。