



Title	Study on the Control of Acidity and Structure of Zeolites toward the Development of High-Performance Catalysts in Polyolefin Cracking
Author(s)	國領, 伸哉
Citation	大阪大学, 2025, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/101691
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (國 領 伸 哉)	
論文題名	Study on the Control of Acidity and Structure of Zeolites toward the Development of High-Performance Catalysts in Polyolefin Cracking (ポリオレフィン分解における高性能触媒の開発に向けたゼオライトの酸性質と構造の制御に関する研究)
論文内容の要旨	
<p>持続可能性の観点から、廃プラスチックのケミカルリサイクル技術の開発が望まれている。特にポリオレフィン、ゼオライト触媒を用いた接触分解により高価値な化学原料の選択的回収が可能になるため、当該反応における高性能なゼオライト触媒の開発に向けた研究が盛んに行われている。しかし、反応のメカニズムが複雑である上、ゼオライトがもつ物理的・化学的特性が多いため、それら各特性と分解活性の詳細な関係については未だ不明な点が多い。本論文は、ゼオライト触媒の精密な設計による各特性の分解活性への影響解明と、それらに基づいた高性能ゼオライト触媒の開発について述べたものである。</p> <p>第2章では、ゼオライトの表面形態を制御することによって、構造特性が分解温度と生成物分布に与える影響を評価し、触媒表面における分解反応のメカニズムを解明した。第3章では、ゼオライトの構造特性を維持したままBrønsted酸性のみを制御し、分解活性のBrønsted酸強度への強い依存性を確認した。第4章では、構造欠陥を多く有するゼオライト触媒を開発し、触媒のLewis酸性がポリオレフィン分解温度を低温化させることを初めて明らかにした。第5章では、異種金属元素の導入によるゼオライト触媒のLewis酸性向上が分解活性にもたらす影響について評価した。一連の実験から、導入方法のいかんに関わらず、ゼオライト中のアクセス可能なLewis酸性金属サイトの増加による分解活性の向上を確認した。</p> <p>第6章では、ゼオライト中へのCr⁶⁺導入により、新規のコーキング抑制スキームを確立し、酸化再生処理を経ずに繰り返し使用可能であることを確認した。第7章では、低級オレフィン収率に焦点を当てた。ゼオライト中のBrønsted酸点は、オレフィンのプロトン化とそれに続く諸反応により他の炭化水素への転換を促進する。第4章及び第5章においてゼオライト中のLewis酸点も分解反応を促進することを明らかにしているため、Brønsted酸点を持たないLewis酸性のSn-Betaゼオライトを合成し本反応に適用した。合成したSn-Betaゼオライトは、従来のBrønsted酸性のBetaゼオライトと比べて20 %以上高い低級オレフィン収率を記録した。第8章では、Cr⁶⁺を導入したSn-Betaゼオライトを開発した。合成した触媒は、酸化再生処理を必要とせず、繰り返し分解反応試験においていずれも従来のBrønsted酸性のBetaゼオライトと比べて20 %以上高い低級オレフィン収率を維持した。</p>	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (國 領 伸 哉)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教 授	西 山 憲 和
	副 査	教 授	水 垣 共 雄
	副 査	教 授	境 慎 司

論文審査の結果の要旨

ポリオレフィン系の廃プラスチックについて、ゼオライト触媒を用いた接触分解による原料化技術の開発が望まれており、高性能触媒の開発に向けた研究が盛んに行われている。しかし、ポリオレフィンの接触分解反応のメカニズムが複雑である上、ゼオライトがもつ物理的・化学的特性が多いことから、それら各特性と分解活性の詳細な関係については未だ不明な点が多いのが現状である。高性能なゼオライト触媒の開発を目指す上で、これらの特性と活性の関係解明は必須である。

学位申請者の研究では、ゼオライト触媒の精密な設計により、各特性の分解活性への影響解明を行った上で、ポリオレフィン接触分解反応へ向けた新規高性能ゼオライト触媒の設計方針を提案した。具体的には、ゼオライトの外表面積や活性点の位置などの構造特性、Brønsted酸性、Lewis酸性が分解活性にもたらす影響を解明し、それらの知見をもとに2種類の新規高性能触媒の設計方針を提案した。一つは「耐コーキング性能を持ち、繰り返し使用できる触媒」、もう一つは「低級オレフィンを選択的に生成する触媒」である。これらの触媒は、ポリオレフィン接触分解反応において、非常に優れた触媒特性を示すことを明らかにした。

投稿論文は、主要論文9報、関連論文7報合計16報を発表しており、これらの成果は、ポリオレフィン接触分解反応におけるゼオライト触媒の新たな設計指針を構築し、ケミカルリサイクルなどの実用化の加速に貢献するものである。

以上のように、学位申請者は、ゼオライトの形状・サイズおよびミクロな視点から固体酸の制御を行い、ポリオレフィン接触分解活性との関係を明らかにした。これらはプラスチックのケミカルリサイクルに有効な触媒の設計指針を示したものであり、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。