OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Design of New Process of Zeolite Synthesis and Application for Photocatalyst
Author(s)	千代田, 修
Citation	大阪大学, 2006, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/46862
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。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

氏　　名	千代田（ちよだ）　修（おさむ）
博士の専攻分野の名称	博　士（工　学）
学位記番号	第　20320　号
学位授与年月日	平成18年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科マテリアル応用工学専攻
学位論文名	Design of New Process of Zeolite Synthesis and Application for Photocatalyst （ゼオライトの新規合成プロセスの設計および光触媒への応用）
論文審査委員	（主査） 教　授　山下　弘巳 （副査） 教　授　田中　敏宏　　教　授　藤本　愼司

論文内容の要旨

本研究では、天然鉱物として知られる一方で、その特徴から触媒を始めとする新規化学材料としても注目されるゼオライトに関して、以下の2項目について検討を行った。

(1) ゼオライトの新規合成法および修飾法の開発による特性改質

(2) ゼオライトの光触媒材料としての応用

本論文はこれらの成果をまとめたもので、以下のように要約される。

第1章では、本研究の背景、目的および本論文の構成について述べた。

第2章では、天然に存在する各種アルカリ土類金属ゼオライトの合成を、有機構造規制剤を用いないY-ゼオライトの水熱転化反応により実施し、水熱転化における共存ゼオライト種、出発Y-ゼオライトのSi/Al比や水溶液中のカチオン種の影響を明らかにした。特に、カチオン種の影響については、Naを用いた場合にはanalcimeしか、またBaを用いた場合にはharmotomeしか合成されなかったのに対して、Srを用いた場合にはbrewsterite、heulandite、gmelinoiteを合成できることを明らかにした。

第3章では、合成されたSr型gmelinoiteをNaおよびLaでイオン交換した試料の各種化合物に対する吸着能力を測定した。水、メタノール、エタノールではイオン交換の吸着特性に対する影響は確認されなかったが、窒素、シクロヘキサン、n-ヘキサン、n-プロピルアルコールに関しては、交換したイオンの価数が大きくなるに連れ（Na→Sr→La）吸着量が多くなることが確認された。分光学的分析の結果より、イオン交換によってゼオライト構造にひずみが発生し、そのため細孔構造に変化が生じたことが原因であることを明らかにした。

第4章では、大細孔径を有する代表的なゼオライトであるベータ型ゼオライトにTiを担持した光触媒を用いて、水中の微量不純物である2-プロパノールの吸着・分解除去の検討を行った。親水性であるベータ型ゼオライト触媒の合成に対して、フッ素系有機構造規制剤を使用することで触媒が疎水性となり、水中での2-プロパノールに対する選択的な吸着性が向上し、微量不純物の吸着・分解除去に対する光触媒活性が改善されることを見出した。

第5章では、従来のミクロ細孔構造を有するゼオライトとは異なり、特異な性質を示すメソポーラス物質であるメソポーラスシリカを担体に用い、CrとTiを光析出法により担持させた光触媒を調製し、可視光照射下でのプロペン

のエポキシ化反応活性を評価した。光析出法によりCrをTi含有メソポーラスシリカへ担持することで、CrとTiに相互作用が発生し、Crの持つ可視光照射下での光触媒活性およびTiが持つ高い反応選択性の両特性を実現させることを可能とした。

第6章は結論であり、本研究の内容を総括した。

論文審査の結果の要旨

ゼオライトは、天然鉱物として知られる一方で、その特徴から触媒を始めとする新規化学材料として注目されている。本論文は、ゼオライトの新規合成法・修飾法の開発による特性改質に関する研究およびゼオライトの光触媒材料としての応用について検討を行ったものである。

得られた結果を要約すると以下のとおりである。

(1) 天然鉱物類似のアルカリ土類金属ゼオライトの合成を、有機構造規制剤を用いないY-ゼオライトの水熱転化反応により実施し、共存ゼオライト種、出発Y-ゼオライトのSi/Al比や水溶液中のカチオン種の影響を明らかにしている。特に、カチオン種の影響については、Na^+ を用いた場合には analcime のみ、また Ba^{2+} を用いた場合には harmotome のみ合成されるのに対し、Sr^{2+} を用いた場合には brewsterite、heulandite、gmelinite を合成できることを明らかにしている。

(2) Sr型gmelinite を Na^+、La^{3+} でイオン交換した試料の各種化合物に対する吸着能力を測定している。水、メタノール、エタノールではイオン交換の吸着特性に対する影響は確認されないが、窒素、シクロヘキサン、n-ヘキサン、n-プロピルアルコールに関しては、交換したイオンの価数が大きくなるにしたがって吸着量が多くなることを確認している。イオン交換によってゼオライト構造にひずみが発生し、細孔構造に変化が生じることが原因であることを明らかにしている。

(3) 大細孔径を有するベータ型ゼオライトにTiを担持した光触媒を用いて、水中の微量不純物である2-プロパノールの吸着・分解除去を検討している。親水性であるベータ型ゼオライト触媒の合成に対して、フッ素系有機構造規制剤を使用することで触媒が疎水性となり、水中での2-プロパノールに対する選択的な吸着性が向上し、光触媒活性が改善されることを見出している。

(4) メソポーラスシリカを担体に用い、CrとTiを光析出法により担持した光触媒を調製し、可視光照射下でのプロペンのエポキシ化反応活性を評価している。CrとTiに相互作用が発生し、Crの持つ可視光照射下での光触媒活性およびTiが持つ高い反応選択性の両特性を併用する土とを可能としている。

以上のように、本論文は、ゼオライトの新しい合成法・修飾法を開発し、細孔構造および表面化学特性を改質することにより、分子の選択吸着を可能にするとともに、光触媒担体としての有意性を明らかにしているものであり、材料工学上寄与するところが大である。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。