

Title	Core-Shell Zeolite Composite Catalysts
Author(s)	宮本, 学
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/47297">https://hdl.handle.net/11094/47297</a>
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、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

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

Osaka University

氏名	みやもと まなぶ 宮 本 学
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学位記番号	第 2 1 2 5 3 号
学位授与年月日	平成 19 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 基礎工学研究科物質創成専攻
学位論文名	Core-Shell Zeolite Composite Catalysts (コアシェル型ゼオライト複合触媒)
論文審査委員	(主査) 教授 上山 惟一 (副査) 教授 金田 清臣 教授 平井 隆之 助教授 西山 憲和

### 論文内容の要旨

ゼオライトはその結晶構造に由来する均一な分子レベルの細孔を持つことや、化学組成を変化させることにより、イオン交換能、酸触媒能など、様々な特徴を有する。このため、ゼオライトは反応、分離工程において非常に有用な材料である。本研究では、触媒粒子上にゼオライト膜を被覆し、ゼオライトの持つ分子ふるい作用を利用することによって反応と分離を同時に行う、反応分離型触媒の開発およびその触媒特性についての検討を行った。

**Chapter 1** ゼオライトを用いた反応分離プロセスおよびゼオライト膜に関する研究動向を記した。

**Chapter 2** ゼオライトの一種である Silicalite-1 を分離膜として用いるとキシレン異性体中からパラ体を選択的に分離することがわかっている。そこで、silicalite-1 をシリカーアルミナ触媒粒子上に膜状に合成した触媒の開発を行った。Silicalite-1 で被覆した触媒はトルエンを用いたキシレン合成（不均化およびアルキル化）において生成物中のパラキシレンを選択的に分離し、高いパラ選択性を示すことがわかった。

**Chapter 3** 白金を担持させたチタニア粒子を Silicalite-1 膜で被覆したコンポジット触媒の開発を行った。直鎖および分岐状パラフィンの水素化を行ったところ、直鎖状炭化水素を選択的に反応させることに成功した。

**Chapter 4,5** Silicalite-1 と同じ結晶構造を持ち、更に触媒活性を有するゼオライト ZSM-5 結晶を酸触媒として用い、ZSM-5 上に Silicalite-1 を被覆した複合触媒の開発を行った。このコンポジット触媒を用いてトルエンを用いたキシレン合成を行ったところ、極めて高いパラ選択性を示すことがわかった。また、本複合触媒は優れたパラ選択性を示すだけでなく、同時に高いトルエン転化率も有することがわかった。さらに、TEM による異種ゼオライト間の結晶構造解析から触媒特性を明らかにした。(Chapter 4) さらに、核となる ZSM-5 の酸量および形状を変化させた時の触媒特性および被覆した silicalite-1 層の影響について詳細に検討を行った。(Chapter 5)

**Chapter 6** 上記結果の総括をするとともに今後検討すべき課題および更なる応用に関して記した。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は触媒粒子のゼオライトコーティングという基本概念の元に、ゼオライトの触媒機能と分子ふるい機能を融合させて新規な膜型反応器である粒子サイズの膜型反応器の開発を目指したものである。第1章では、ゼオライト膜作成、およびゼオライト膜を用いた膜型反応器に関する研究の現況を概説している。第2章では、ゼオライト膜をコーティングしたシリカアルミナ粒子による生成物選択性について実験的研究を行い、キシレン生成における優れた *p*-キシレン選択性を有することを見出している。第3章では、オレフィンへの水素添加反応において、ゼオライトコーティングした白金担持チタニア粒子触媒が優れた反応ガス選択性を示すことを見出している。第4、5章では、ZSM-5単結晶ゼオライト粒子の上にシリカ単結晶をエピタキシャルにコーティングさせたもの、および微小なシリカ単結晶粒子を積層コーティングさせたものを開発して、2重構造ゼオライトの透過・選択性を検討している。内側のゼオライトが触媒活性をもち、触媒活性をもたないゼオライトで外側をコーティングした複合体は、メタノールを用いたトルエンのアルキル化反応において、非常に優れたパラ選択性とトルエンの高い転化率を示した。従来、メタノールを用いたトルエンのアルキル化反応での選択性と転化率は、片方が上がると他方が下がるというトレードオフの関係を持っていたが、本研究で開発された触媒は、選択性と転化率とのトレードオフ関係を大きく逸脱して双方共に非常に高い値を示しており、研究界および業界双方から高い評価を得ている。第6章では本研究の総括と近未来への研究展望が述べられている。

以上の内容を有する本論文は、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。