

氏名	猪木 栄作
授与した学位	博士
専攻分野の名称	環境学
学位授与番号	博甲第5059号
学位授与の日付	平成26年 9月30日
学位授与の要件	環境学研究科 資源循環学専攻 (学位規則第5条第1項該当)
学位論文の題目	膜状およびバルク状ゼオライトの作製と特性評価に関する研究
論文審査委員	教授 三宅通博 教授 難波徳郎 准教授 亀島欣一 准教授 紅野安彦

## 学位論文内容の要旨

規則的なマイクロ細孔構造に由来する分子ふるい作用や特異な吸着特性等をもつゼオライトは、触媒、吸着材、イオン交換材など幅広く用いられている。ゼオライトがもつ多様な特性を更に高度に利用するためには、その形態制御が必要である。

本論文では、新規膜化法およびバルク体化法を開発し、それらの性能を検討した。

膜化に関しては、Secondary growth 法を用いて強固なゼオライト膜の作製を検討した。その結果、支持基板との複合層を有した緻密な Na-A 型ゼオライト膜および MFI 型ゼオライト (ZSM-5) 膜を作製することに成功した。それらを用いて、エタノール及び水の透過試験を行ったところ、Na-A 膜は親水性、ZSM-5 膜は疎水性を示したが、両膜とも高吸引により破壊された。

バルク体化に関しては、過飽和水溶液からのゼオライトバルク体の作製を検討した。その結果、ワンポット水熱合成法により機械加工が可能な強度を有する ZSM-5 バルク体の作製に成功した。水熱容器の容積に応じて、大きさの異なるバルク体を作製することができた。さらに、機械加工が可能な強度を有する疎水性のモルデナイトや親水性のカンクリナイトのバルク体を作製することに成功した。

得られた ZSM-5 バルク体を用いてアルコール/水混合溶液の分離濃縮を検討したところ、ZSM-5 膜を凌駕する性能を示すことを見いだした。さらに、H<sup>+</sup>を導入した H-ZSM-5 バルク体は、エタノールから低級オレフィンを生成することができる形状選択性触媒作用を有することも見いだした。

結合剤などの添加物を加えることなく得られたバルク体は、ゼオライトが本来もつ多機能な特性を保持しており、バルク体の構造制御により更に高度な利用が可能であると期待される。

## 論文審査結果の要旨

分子ふるい機能、イオン交換機能、吸着機能、触媒機能等を有するゼオライトは、工業や環境分野等で利用価値の高い材料である。ゼオライトは通常粉末状固体として得られるが、機能をより高度に利用するためには、膜状やバルク状のゼオライトが望まれている。本論文は、新規膜状およびバルク状ゼオライトの作製法、ならびにそれらの特性を論じ、以下のような成果を得ている。

- ・膜状ゼオライトの作製と特性評価では、多孔性の基板と一体化した新規のZSM-5膜とゼオライトA膜の作製に成功し、それらの特性を評価した結果、前者は疎水性、後者は親水性を示すことを明らかにしている。
- ・バルク状ゼオライトの作製と特性評価では、過飽和の出発原料溶液を使用することで、機械易加工なセンチメートルオーダーのゼオライトバルク体をワンポット水熱合成法で作製することに世界に先駆け成功し、その特性を評価している。特に、ZSM-5バルク体は期待以上のアルコール分離濃縮性能を示し、ZSM-5膜を凌駕する性能であることを明らかにしている。アルコールの分離濃縮性能には、分離分子の極性およびZSM-5バルク体の分離分子に対する親和性が寄与していると考察している。さらに、H-ZSM-5バルク体はエタノール改質触媒性能も有することを見いだしている。

以上の様に、本論文はゼオライトを高度に利用するための指針となる有用な知見を述べている。従って、論文内容、論文発表会、参考論文を総合的に審査した結果、本論文は博士（環境学）の学位に値するものと認められる。