

(様式7)

学位論文審査結果の要旨

氏名	真田 貴志
審査委員	委員長 _____ 片田 直伸 _____ 印 委員 _____ 奥村 和 _____ 印 委員 _____ 南条 真佐人 _____ 印 委員 _____ 伊藤 敏幸 _____ 印 委員 _____ _____ 印
論文題目	ゼオライト酸性質およびその担持金属への効果
審査結果の要旨	<p>超安定化 Y 型 (Ultra stable Y-type : USY) ゼオライトは流動接触分解触媒として広く利用されており、工業的観点から最も重要なゼオライトの一つであると考えられる。近年片田、奥村らは活性点の構造や形成過程、USY ゼオライトの担体としての機能に関して、新しいキャラクタリゼーション技術を用いて原子レベルで構造を明らかにすることによって研究を展開してきた。</p> <p>本論文は、USY ゼオライトのアンモニウム塩水溶液処理による強酸点発現機構を明らかにするとともに、これらゼオライトに Pd および Au を担持した際の効果について論じたものである。まず、(1) 酸性質や結晶構造の異なる担体に Pd を導入し、様々な溶媒中で生成する金属 Pd の状態について XAFS 法を用いて検討を行った。USY ゼオライトへ担持した Pd は、σ キンレン中で水素によるバブリングをすることにより原子状にまで高分散した Pd の状態で形成され、この原子状 Pd が鈴木・宮浦カップリング反応に対して非常に高活性を示すことを見出した。(2) 次に Au ナノ粒子を安定かつ均一な形でゼオライト上に形成させることを検討した。硝酸アンモニウム水溶液処理により強い Brønsted 酸点を発現する NH₄ 置換型 USY ゼオライト上にはイオン交換法により 5.5 wt% まで Au を担持することが可能であった。673-973 K で熱還元処理した Au/USY ゼオライトは、ベンジルアルコールの酸化触媒として活性を示し、少なくとも 12 回の再利用が可能であった。強酸点を有する USY ゼオライトを用いることにより Au 粒子サイズを調整できる可能性を示した。(3) また、USY ゼオライトのアンモニウム塩水溶液処理による強い酸性質を発現する機構について ²⁷Al および ¹⁷O MAS NMR を中心にゼオライトの構造解析を用いて検討した。²⁷Al MQMAS NMR スペクトルにてスチーミング処理された USY ゼオライトでは骨格外 Al 種と考えられる歪んだ IV_b 種の存在が確認された。IV_b 種は DFT 計算により、骨格外である site I' 位置に脱アルミニウムにより Al(OH)²⁺ が配位し、歪んだ四面体を形成した種と考えられる。</p> <p>以上のように、本研究は USY ゼオライトでの強酸点の発現機構の一端を解明し、さらに USY ゼオライトの貴金属触媒の担体としての可能性を見出したものである。これらの知見は、未利用資源の活用や、枯渇が懸念されている貴金属元素の省資源化に資するものと期待される。したがって、本論文は博士 (工学) の学位に値するものと認められる。</p>