

2023 年度年次報告書

持続可能な材料設計に向けた確実な結合とやさしい分解

2021 年度採択研究代表者

伊與木 健太

東京大学 大学院工学系研究科

講師

リサイクル可能な原料でリサイクル可能な多孔体を合成

研究成果の概要

本研究では、多孔質材料であるゼオライトのサステイナブルプロセス構築を目的として、ゼオライト合成時に用いられ使い捨てられている原料のリサイクル手法、細孔閉塞や構造崩壊が起こったゼオライトを再利用するためのリサイクル手法の2つのリサイクル手法の開発を行っている。2023年度においては、主に(1)温和な条件下で変化する有機物を用いたゼオライト合成、(2)ゼオライト骨格への開裂点となる特定原子の選択的導入について検討を行った。(1)について、有機物のリサイクルに向けて、合成後のゼオライト細孔内において光照射による反応の進行を確認した。MFI型やMOR型ゼオライトといった重要な触媒応用が知られているゼオライトについて合成可能であることがわかり、用いる有機物の変化により得られるゼオライトの特性も異なっていることが示唆されている。層状ケイ酸塩PREFERの層間架橋について、開発した欠陥修復処理をあらかじめ施すことにより、層間に導入する鉄原子が均一な環境にあることを示した。具体的にはフッ化アンモニウムを水酸化テトラエチルアンモニウム水溶液に溶解させ溶液を調製した。この溶液に合成したPREFER粉末を添加し、オートクレーブを用いて加熱した。生成物の評価はXRD, SEM, TEM, IR, NMRなどにより評価した。シラノール欠陥の減少、層間架橋後のUV-visスペクトルやTEM像の変化を観察した。欠陥を修復したことにより、架橋金属が層内に入る、欠陥からマイグレートしたシリケート種が層間を架橋してしまう、といったことを抑えることができたと考えられる。欠陥修復処理と類似した水熱処理は、ゼオライトの骨格の再配列に有効であると考えられ、処理を行うことによりNMRスペクトルへの変化を観察した他、触媒活性や機械的耐久性に変化が見られる事がわかった。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Ryusei Oishi, Duanxing Li, Mina Okazaki, Hiroka Kinoshita, Nagomu Ochiai, Noriko Yamauchi, Yoshio Kobayashi, Toru Wakihara, Tatsuya Okubo, Shohei Tada, Kenta Iyoki, Precise tuning of the properties of MOR-type zeolite nanoparticles to improve lower olefins selectivity in composite catalysts for CO₂ hydrogenation, *Journal of CO₂ Utilization*, 72, 102491, 2023
- 2) Effect of defect-healing treatment on layered silicate precursors toward well-defined crosslinked frameworks, Yoshiaki Ito, Keiichiro Nayuki, Yukichi Sasaki, Toru Wakihara, Tatsuya Okubo, and Kenta Iyoki, *RSC Advances*, 14, 12634, 2024
- 3) Boqing Li, Kenta Iyoki, Piyapatch Techasarintr, Shanmugam Elangovan, Raquel Simancas, Tatsuya Okubo, Toshiyuki Yokoi, Toru Wakihara, Hydrophobicity Manipulation of Titanium-silicalite-1 with Enhanced Catalytic Performance via Liquid-mediated Defect-healing Treatment, *ACS Catalysis*, 13, 15155, 2023
- 4) Jingyun Yu, Kenta Iyoki, Shanmugam P. Elangovan, Haruko Fujinuma, Tatsuya Okubo, Toru Wakihara, Unexpected Low Temperature Activity with Low N₂O Emission of Stabilized Al-rich Zeolite Beta for Selective Catalytic Reduction of NO_x, *Chemistry A European Journal*, 30, e2023031, 2024
- 5) Tatsushi Yoshioka, Kenta Iyoki, Yutaka Yanaba, Tatsuya Okubo, Toru Wakihara, Dealumination of RHO zeolite by acid treatment and recrystallization with organic pore filler *Journal of the*

Ceramic Society of Japan, 132, 45, 2024