



小細孔ゼオライトの組成チューニング法を開発し、耐久性向上を実現

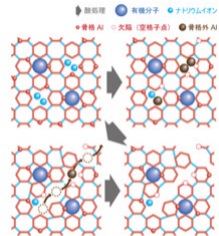
東京大学の大学院工学系研究科 博士2年 吉岡達史, 講師 伊與木健太, 教授 脇原徹らの研究グループは、小細孔ゼオライトの組成チューニング法を開発し、窒素酸化物選択的還元反応における水熱耐久性の向上を実現した。エンジンの排ガス中に含まれる窒素酸化物を分解するための触媒として、結晶性多孔質アルミノシリケートであるゼオライトのうち酸素8員環を最大の細孔としてもつ小細孔ゼオライトが注目されている。しかし、小細孔ゼオライトではAl種が小細孔ゼオライトの狭い細孔を通り抜けることができず、合成後にAlの除去による水熱耐久性向上が難しいとされてきた。これに対し当研究グループは、ゼオライト細孔内に有機物が入っている状態であればAlを除去し、骨格構造も保つことができることを発見した。

本研究では代表的な小細孔ゼオライトの一

つであるAFX型ゼオライトを合成し、有機物が残存した状態で酸処理を行ったところ、Si/Al比は3.6から9.1にまで向上し、結晶性を保ったままで脱Alすることに成功した。AEI型、CHA型、ERI型ゼオライトについても結晶性を保ったままSi/Al比を向上することに成功した。また、欠陥修復処理技術を組み合わせて得られたゼオライトは800℃のスチームで7時間処理した後も触媒試験で高い活性を示しており、耐久性が向上したことが分かった。

また、なぜ小細孔ゼオライトの小さい細孔にもかかわらずAlが除去できたのかを解明し、この新しいメカニズムを「細孔拡大移動プロセス (pore-opening migration process, POMP)」と名付けた(図)。このメカニズムでは、まずゼオライト中のナトリウムイオンなどの無機陽イオンが液体部分へ溶け出し、この無機陽イオンの正電荷をつなげていた骨格内Alが骨格外に脱離し、骨格外Alとなる。骨格外Alはサイズが大きく、そのままではゼオライトの小さな細孔を通過できないが、細孔が部分的に切れ(開裂)、細孔径が広がることにより、骨格外Alが通過できることをアルゴンの吸着測定や高エネルギー全散乱

測定などで検証した。本研究の成果はScience Advances誌に掲載された(DOI: 10.1126/sciadv.abo3093)。



東京大学大学院工学系研究科
教授 脇原徹

講師 伊與木健太

連絡先: 113-8656 東京都文京区本郷7-3-1

E-Mail: wakihara@chemsys.t.u-tokyo.ac.jp (脇原),
k_iyoki@chemsys.t.u-tokyo.ac.jp (伊與木)

URL: <http://www.zeolite.t.u-tokyo.ac.jp/>

[2022年8月2日]