

様式 10

論文審査の結果の要旨

報告番号	甲 先 第 272 号	氏 名	永 廣 卓哉
審査委員	主査 外 輪 健一郎 副査 森 賀 俊 広 副査 杉 山 茂		

学位論文題目

環境に配慮した重金属非修飾触媒によるイソブタンの酸化脱水素反応に関する研究

審査結果の要旨

本研究では、日本が世界において圧倒的なシェアを占める多用途のメタクリル酸メチルの新規合成ルートにおける合成原料となるイソブテンをイソブタンの接触酸化脱水素から合成しようとすることに取り組んでおり、従来最大でも 2%しか得られなかつたイソブテン収率を、環境に配慮した触媒を用いて 5%以上に改善できることを明らかにしている。まず、常法に従いイソブテン収率を著しく改善できる触媒開発のため、メソポーラスシリカである MCM-14 や FSM-16、また人体の骨成分であり環境にやさしいヒドロキシアパタイト(HAp)やリン酸カルシウムを担体としてクロムを修飾した触媒を検討し、いずれも従来のイソブテン収率を劇的に改善し、イソブテン収率 8%を達成している。活性種のクロムに対しては、担体により Cr(VI) と Cr(III) 種間の、または Ce(IV) 種と Cr(III) 種間のレドックス反応を指摘している。さらに環境に配慮した触媒開発を行うために、重金属による修飾を行わずに、酸処理のみを施した MCM-41 やカルシウムとリンの比を変えて調製した HAp の触媒活性を検討し、前者からは最大 6.1%、また後者からは最大 5.8%のイソブテン収率を得ている。重金属による修飾がなくても、様々な重金属を含んで漸く達成できていたイソブテン収率 2%を超えることができ、環境に配慮した触媒でも対応可能であることを示した。酸処理を施した MCM-41 では新たに強酸点が形成され、HAp では量論組成の場合にのみに形成される強塩基性点が触媒活性の向上に寄与していることを示した。

以上本研究は、我が国が国際的な競争力を持つ化成品の原料であるイソブテンの新規合成法として、イソブタンからイソブテンへの接触酸化脱水素反応を検討し、高活性な重金属で改質した触媒とともに、重金属による改質をしていない高活性な触媒の開発に成功し、28th International Symposium on Chemical Engineering (2015年12月5日 (Korea)) にて Best Oral Presentation Award を受賞するなど専門家の評価も高く、本論文は博士 (工学) の学位授与に値するものと判定する。