

## 論文審査の結果の要旨

報告番号	乙 先 第 <b>33</b> 号	氏 名	加藤裕樹
審査委員	主査 森賀 俊広 副査 今田 泰嗣 副査 杉山 茂		
学位論文題目	2元金属修飾メソポーラスシリカによるイソブタンの酸化脱水素反応によるイソブテン合成に関する研究		
<p>審査結果の要旨</p> <p>本研究では、工業的に有用なイソブテンをイソブタンの酸化脱水素反応で製造するため、その有望な触媒であるクロム修飾メソポーラスシリカ触媒の改良を行い、これまで以上の高性能な触媒開発を達成している。</p> <p>3次元細孔構造を有するメソポーラスシリカであるMCM-48単独では、触媒活性はほとんどなかったが、クロム(Cr)を修飾したCr-MCM-48 (Si/Cr = 1,000)で、イソブタン転化率22.8%、イソブテン選択率30.0%、イソブテン収率6.8%を達成した。</p> <p>2次元細孔構造を有するメソポーラスシリカの中でも細孔径が大きいSBA-15に、Crを修飾すると、Si/Cr = 50の触媒で最大性能を示し、イソブタン転化率28.3%、イソブテン選択率54.3%、イソブテン収率15.4%を達成した。Cr修飾したSi/Cr = 50の触媒の比面積が1,620 m<sup>2</sup>/gとなり、触媒改善に寄与していることが分かった。</p> <p>非常に高い触媒性能を示したCrを修飾したSBA-15に新たな元素を導入するとともに、さらなる触媒性能の向上および有害性の高いCr使用量の低減も狙い検討を行った。モリブデン(Mo)を添加した場合、Cr:Mo = 1:1においてイソブテン収率はMoを修飾しない触媒を上回った。CrとMoが複合酸化物のようにCr-O-Mo結合を形成することで、イソブテンの逐次酸化反応を促進するクロム上の2重結合酸素量の調整を行い、高いイソブテン選択率を達成したと考察している。またイソブチルカルベニウムカチオンの水素引き抜きをMoが行い、Crの還元の一部をMoが担うため、Cr種の過剰な還元を抑制し、通塔時間6時間の反応において安定した触媒活性を維持することが可能と考察した。</p> <p>以上の結果は、本触媒系を工業化するために従来知られていない触媒機能を解明するとともに実際に高活性触媒を開発しており、本論文は博士(工学)の学位授与に値するものと判断する。</p>			