

(様式7)

学位論文審査結果の要旨

氏名	中村 浩史郎
審査委員	委員長 _____ 片田 直伸 _____ 印 委員 _____ 辻 悦司 _____ 印 委員 _____ 菅沼 学史 _____ 印 委員 _____ 増井 敏行 _____ 印 委員 _____ _____ 印
論文題目	Analysis and Design of Zeolite-based Catalysis for Production of Benzene Derivatives
審査結果の要旨	<p>脱石油依存の社会に向けて、天然ガスが注目されている。天然ガスの主成分はメタンであるが、メタンは安定性が高いため、熱燃料としての利用に留まっているのが現状であり、化学原料として利用するためには触媒の開発が重要である。工業触媒として広く利用されているゼオライトの応用が有望で、その触媒作用の解明は新規ゼオライト触媒の開発につながると考えられる。</p> <p>ゼオライトをはじめとする固体酸を触媒として、トルエンの不均化とクメンの分解を行い、その結果を速度論的に解析し、アイリングプロットから補償関係が得られた。申請者は固体触媒の分野に host-guest 化学の理論を適用し、活性化エントロピーのエンタルピーに対する傾きが遷移状態の自由度の指標、横軸の切片が自由度を無視した本質的な活性化エンタルピーの指標となることを見出した。</p> <p>またさまざまな metal/MFI のメタンによるベンゼンのメチル化活性を比較し、Co/MFI の突出した活性を発見した。さらに Co/MFI 上の活性種が MFI ゼオライトのイオン交換サイトに単原子状に分散して存在するルイス酸性の Co(+II)種であることを解明した。Metal/MFI を触媒としてメタン-ベンゼン昇温反応を行い、MFI 上の金属種の酸化状態やメタンによるベンゼンのメチル化活性と反応選択性の関係を調べた。これにより、Co/MFI 上ではカチオニックな Co(+II)が極めて安定なことと、適度な水素化-脱水素化活性を有することを見出し、特異的な触媒活性はこれらの組み合わせによって発現することを明らかにした。ゼオライトのイオン交換能の起源である Al 濃度を変え、当初の Co/MFI よりも選択性が高く、高い反応温度においても触媒寿命の長い Co/MFI を設計し、石油代替の炭化水素資源として期待されるメタンの化学製品への転換に道を拓いた。</p> <p>さらに、これらの知見を活かし、エタンによるベンゼンのエチル化を促進する触媒の開発も行った。多くの metal/MFI の中から、Pb/MFI が高い選択性と安定性を示すことを明らかにした。</p> <p>以上のように、本研究はゼオライトを反応場とする触媒作用の理解や、それを利用した次世代を担う高難度触媒反応の発展に大きく寄与する。これらの成果は原著論文3報をはじめ、国内外の学会で多数発表され5件の優秀発表賞を受け、高く評価されているため、博士(工学)の学位論文に値すると判断される。</p>