審　査　の　結　果　の　要　旨

論文題目　　工業化を目的とした各種触媒プロセスの開発
―ボトルネック課題の抽出とその解決策―

氏　　名　　瀬戸山　亨

本論文は化学企業において工業触媒プロセスの実用化を目指す研究開発を実施する上で、カギと考えられる５種類の本質的な技術課題(ボトルネック課題)を取り上げ、その解決の為の基本戦略および具体的な研究・開発の実例について報告している。本論文は日本語で書かれており全部で七つの章から構成されている。まず第一章において５種類のボトルネック課題についてその内容、課題解決の基本コンセプトが紹介され、第二章から第六章で具体的な研究内容について紹介・議論されており、第七章で全研究内容が総括されている。

第二章では、テトラヒドロフランの無水酢酸存在下での固体酸触媒を用いた開環重合を具体例として、原料と生成物の分子の嵩高さに起因する拡散速度の違いの悪影響を克服するために、反応速度シミュレーションに基づいたメソ多孔体担持固体酸触媒を設計し工業化した事例について報告している。この触媒プロセスは世界初のメソ多孔体を用いた重合触媒の実用化事例である。

第三章では、目的生成物収率が、逐次反応によって低下する課題の解決手段として、原料であるオレフィン、ケトンそれぞれの目的とする酸化生成物を、最適なジオールでアセタール化することによって安定化させ、逐次酸化の進行を抑制する触媒設計について報告している。具体的にはシクロヘキセン、アクロレインの液相酸化においてWacker型多段階酸化触媒系として$PdCl_2/CuCl_2/FeCl_3$/ジオールを提案し、工業的に十分な反応速度、生成物選択率を実現している。またシクロヘキサノンの酸化的開裂反応では、Fe担持/共担持アルミノシリケート＋ジオールの触媒系で遷移金属担持強酸性ゼオライト触媒による反応を実現しており、今日、世界的に事業規模が拡大しているSCR触媒（自動車排ガスNO_xの還元的分解（Selective Catalytic Reduction))や、研究開発が急展開している遷移金属担持ゼオライト触媒によるメタンの部分酸化に対して示唆に富む研究と位置付けることができる。

第４章では液相反応と気相反応において、極めて触媒寿命の短い触媒をどのように再生・リサイクルすれば工業プロセスに発展させうるかについての研究・開発を報告している。液相反応ではシクロヘキサノンオキシム（CHO）の

ベックマン転位反応において、マイクロフロー反応器による速度論的解析によってCHOとジメチルホルムアミドより誘導される有機触媒と分類すべきイミニウムイオンによる自己触媒反応機構を明らかにし、失活物質の構造解析とその分解・再原料化によるリサイクルプロセスを提案している。気相反応においては３次元構造を有する８員環アルミノシリケートを精巧に修飾処理した触媒を用い、エチレンのプロピレンへの転換（Inter-Conversion）反応による９０％超の高選択率の実現、水素化処理によるコーキング劣化した触媒の再生技術を報告している。ゼオライトのコーキング除去には酸化燃焼が定法であるが、水素化再生は水（スチーム）が全く生成しないので脱アルミの起こりえない革新的再生法であり、ゼオライト触媒の新しい展開の可能性を示唆するものである。

第五章では従来MTO反応においては水蒸気副生による脱アルミ進行を抑制するために反応温度を下げざるを得ず、反応速度低下を補償する為に触媒量を増やさざるを得ず、結果的に低線速となり目的物収率が低下するというトレードオフ課題に対して、原料として炭素数4以上のオレフィンと少量のメタノール、触媒として超高Si/Al比のMFI型アルミノシリケートを用いることによって従来採用できなかった５００℃以上の反応温度で高選択率、低活性劣化を実現している。速度論的解析によりこの結果を裏付けると共に、パイロット規模でスケールアップにより工業化可能な技術を確立できた経緯について報告している。

第六章では２１世紀の世界で深刻化している気候変動の主要因である化石資源燃焼由来の CO_2 削減策として、メタンの化学原料化（＋CO_2 資源化）、バイオマス由来の化学品製造、人工光合成（可視光応答光半導体触媒による水分解＋水素と CO_2 からの低級オレフィン合成）について報告している。メタンの化学原料化についてはメタンと CO_2 を原料とする酸化的改質反応による（H_2+CO）混合ガスの製造触媒として $Ni/Mg_4AlMnOx$ を用いて 750℃の反応温度での高活性＋安定活性の実現しており、アルカリ土類金属としての Mg のエントロピー増大因子としての寄与、Mn の非酸素存在下での炭素質の CO_2 分解特性という特異的な機能を明らかにしている。またバイオマス化学品、人工光合成については循環炭素社会実現の為の CO_2 削減量の目標値の数字化、それを達成するための今後のあるべき技術開発の方向性について提案・報告している。

以上のように本論文は、工業化を視野に入れた触媒プロセス開発における共通的ボトルネック課題を抽出し、いくつもの独創的な解決策を提案し、完成度の高いレベルまで技術を仕上げ、その解決策の有用性を証明しており、一連の研究成果は、触媒化学の社会実装という視点、特に工業化を意識した化学プロセスの高度設計という点で有為なものであり、特に反応機構・速度論を通じたプロセス化という点で化学システム工学の発展に大いに貢献すると認められる。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。