

豊橋技術科学大学長 殿

平成 18 年 2 月 27 日

審査委員長 伊津野 真一



論文審査及び最終試験の結果報告書

このことについて、下記の結果を得ましたので報告いたします。
記

学位申請者	Tran Mai Huong	学籍番号	第 0 1 5 5 0 7 号
申請学位	博士(工学)	専攻名	機能材料工学
論文題目	Synthesis, Structure and Catalytic Properties of Molybdenum Oxides and Molybdenum Heteropolyacid Catalysts. (モリブデン酸化物とモリブデンヘテロポリ酸触媒の合成, 構造, および触媒特性)		
公開審査会の日	平成 18 年 2 月 3 日		
論文審査の期間	平成 18 年 1 月 25 日~平成 18 年 2 月 27 日	論文審査の結果	合格
最終試験の日	平成 18 年 2 月 3 日	最終試験の結果	合格

論文内容の要旨
重要な化学原料であるホルムアルデヒドは、メタンを原料として合成ガスを経由する3段階法で合成されているが、最近、シリカに担持したケイモリブデン酸 (SMA) 触媒が高温水蒸気下でのメタンの部分酸化によるホルムアルデヒドの1段階合成に対して効果的な触媒性能を有することが報告された。本研究では、SMAとリンモリブデン酸 (PMA) を主とする種々の担持モリブデン酸触媒を調製して特性化するとともに、メタン、エタン、およびメタノールの部分酸化反応に対する触媒特性と活性種の状態との関係を検討したものである。第1章では、本研究で対象としたモリブデン種の構造・性質およびその応用を含む研究の背景・目的を述べている。第2章では、担体や触媒の調製法、特性化、触媒反応試験、等の実験法について記述している。第3章では、シリカ担持SMA触媒における活性種の構造と水蒸気の役割について述べている。第4章では、同じ触媒をエタンに適用してその触媒活性を調べている。第5章では活性種の高分散化を図る目的でY型ゼオライトのスーパーケージに1分子のSMAまたはPMAを内包した触媒をデザインし、その触媒特性を評価している。第6章では、SMAおよびその分解生成物であるβ-MoO₃について構造と触媒性能を調べ、反応中の活性種の状態について検討している。最後に本論文の結論を述べている。

審査結果の要旨
天然ガスの主成分であるメタンを部分酸化し、1段階でメタノールやホルムアルデヒドを合成する方法は最も理想的な方法であり、多くの研究がなされている。シリカ担持SMA触媒による高温水蒸気下でのメタン部分酸化反応は現段階で最も有望な方法であるが、より高活性化を図るには、活性種の状態を明らかにし、その制御方法を確立する必要がある。本論文では、シリカ担持SMA触媒の活性種について検討し、反応中にSMAは分解してβ-MoO₃を生ずるが、水蒸気の下ではSMAが再生され、これが高活性の維持に寄与していることを明らかにした。この触媒はエタンの部分酸化反応にも有効であることも確認した。また、モリブデン種の高分散化が鍵となっているため、Y型ゼオライトのスーパーケージ内にSMAやPMAを1分子ずつ分散させた触媒が有望であると予想し、Ship-in-bottle法による合成法を確立してその有効性を証明した。さらに、高表面積を有するメソポーラスシリカ (MCM-41) を単体とするSMA触媒およびβ-MoO₃触媒とを比較し、反応中のSMAの再生にはモリブデンの高分散性とケイ素の分散状態が重要であることを明らかにした。これらの知見は、メタンを初めとする有機化合物の部分酸化反応のための触媒開発およびプロセス制御において重要であり、本分野の研究発展に大きく貢献した。よって、本論文は博士(工学)の学位論文に相当するものと判定した。

審査委員
伊津野 真一
水嶋 生智
堤 和男
角田 範義
上野 晃史
印

(注) 論文審査の結果及び最終試験の結果は「合格」又は「不合格」の評語で記入すること。