

豊橋技術科学大学長 殿




平成 24年 2月 27日

審査委員長 大串 達夫



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。

学位申請者	Nguyen Huu Huy Phuc	学籍番号	第 065504 号
申請学位	博士 (工学)	専攻名	機能材料工学
論文題目	Synthesis and Raman Spectroscopy Characterization of Molybdenum-containing Catalysts (モリブデンを含む触媒の合成とラマン分光法による評価・解析)		
公開審査会の日	平成 24 年 2 月 21 日		
論文審査の期間	平成 24年 1月 26日～平成 24年 2月 27日	論文審査の結果	合格
最終試験の日	平成 24 年 2 月 21 日	最終試験の結果	合格
論文内容の要旨	<p>メタン→合成ガス(CO+H₂)→メタノール→ホルムアルデヒドという現在の製造工程の簡略化を目指し、メタンから1段でホルムアルデヒドへ転換する酸化触媒としてモリブデン酸化物が注目されている。本研究は、この部分酸化反応で重要な役割を果たす2種類のMoO₃とケイモリブデン酸(SMA)に着目し、触媒調製過程で生成するモリブデン化合物の挙動をラマン分光法により詳しく調べ、出発原料と生成モリブデン種との関係を解明したものである。第1章は、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章は、イオン交換樹脂を用いて作製した水溶液中のモリブデン酸の挙動と含浸後のモリブデン酸の挙動について報告している。第3章は、出発原料をイオン交換が必要であるNa₂MoO₄からH₂MoO₄に代えた時に生成するSMAの挙動について報告している。第4章は、第3章で調製したSMA触媒を用いたメタノール酸化反応活性評価とその時のモリブデン酸化物の構造変化について報告している。第5章は、H₂MoO₄を原料としたモリブデン種を内包したメソ多孔性シリカ(SBA-15)の調製を報告している。第6章は、H₂MoO₄を原料とした新規な準安定酸化モリブデンの作製について述べている。第7章は、熱天秤―質量分析法を使った新しい触媒活性評価の方法について報告している。最後に本論文の結論を述べている。</p>		
審査結果の要旨	<p>メタンを部分酸化し、メタノールやホルムアルデヒドを製造する触媒としてモリブデン化合物が有効であることが報告されている。しかし、触媒調製という観点で調製過程のモリブデン種を詳しく解明した研究例は非常に少ない。本研究では、ラマン分光法を用いて触媒調製における溶液から固体までのモリブデン化合物同定を試みた。不明であったβ型MoO₃生成に必要な前駆体溶液中での[Mo₃₆O₁₁₂(H₂O)₆]⁸⁻形成の発見や、難溶性のために用いられなかったH₂MoO₄を原料とした新規なモリブデン触媒合成法(Moを内包したSBA-15の調製等)の開発とそのモリブデン種の同定は初めての成果である。特に、シリカゲルを担体とした触媒調製では、担体上に生成するSMAにはα型とβ型があり、水熱・ゾルゲル法によりβ型SMAが作製出来ることを初めて明らかにした。メタノールの部分酸化反応ではβ型がホルムアルデヒドへの高選択性を示し、その原因として反応中に新型のMoO₃が生成することを明らかにした。更に新MoO₃の合成法を開発し、準安定な三斜晶系MoO₃であることを初めて明らかにした。以上の研究内容は、学術誌4報、国際会議論文1報として報告している。</p> <p>これらの知見は、対象とする部分酸化反応に限らず、今後のモリブデン触媒の開発研究の進展に大きく貢献している。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。</p>		
審査委員	大串 達夫 	水嶋 生智 	角田 範義 

(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。