

## 審査の結果の要旨

氏名 嶋崎 由治

本論文は、「新規固体酸塩基触媒の開発および気相反応による反応性モノマー新製法への応用」と題し、全7章で構成されている。

第1章は序章であり、古典的プロセスが新触媒の開発によって高効率な新プロセスに転換された事例、中でも液相反応プロセスが溶媒を用いない気相反応プロセスに転換された事例が多くあることを示している。さらに気相反応の有用性とともヒドロキシエチル基を有する反応性基礎化学品を主に原料に用いて高付加価値誘導体を従来よりも安全、安価に、安定して製造でき、しかも環境負荷を大幅に低減できる製造方法を開発する本研究の目的を述べている。第2章では、グリコールエーテル類の気相分子内脱水反応によるビニルエーテル類の新規製造方法および新規触媒の開発を目的に固体酸塩基触媒を探索し、 $\text{Cs}_2\text{O}$ と $\text{SiO}_2$ から成る触媒が高性能を発現することを見出している。これまで、グリコールエーテル類を直接脱水してビニルエーテルを製造する方法は報告されておらず、世界初の直接脱水法の例となっている。ベンチおよびパイロットスケールでの反応および精製プロセスの最適化を行い、実用技術を実証している。また、触媒の作用機構もパルス法や赤外分光法を用いて検討し、触媒表面のシラノール基が重要な働きをしていると推察している。第3章では、モノエタノールアミンとγ-ブチロラクトンからの*N*-(2-ヒドロキシエチル)-2-ピロリドン(HEP)連続製造法について検討し反応条件の最適化を行い、工業化に成功している。第4章では、HEPの気相分子内脱水反応による*N*-ビニル-2-ピロリドン(NVP)の製造に対し、アルカリ金属酸化物を天竺した $\text{SiO}_2$ が優れた触媒となることを見出し、工業化に成功している。また、触媒の作用機構をパルス法や赤外分光法を用いて検討し、この反応においても触媒表面のシラノール基が重要な働きをしていると推察している。第5章では、メタクロレインとエタノールの気相水素移動反応によるメタリルアルコールの選択合成を検討し、 $\text{MgO}$ に $\text{Nb}_2\text{O}_5$ を添加すると $\text{MgO}$ 単独よりも反応収率が向上することを見出している。また、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ は単独でも触媒活性を示すが、それに少量のアルカリ(またはアルカリ土類)金属元素を添加すると転化率、選択率ともに増加するこ

とを見出している。触媒の酸塩基強度を指示薬法で測定した結果、この反応には適切な酸塩基強度を有する触媒が高い性能を示すことを明らかにしている。第6章では、モノエタノールアミンのエチレンイミン(EI)への気相分子内脱水反応に実用化した、アルカリ金属元素とリンを含有する  $\text{SiO}_2$  系触媒の活性種が、アルカリ金属リン酸塩であることを解明している。また、従来提案されていた触媒作用機構は EI より先に  $\text{H}_2\text{O}$  が脱離する事実と矛盾しており、アセトアルデヒドの副生成機構も明らかにしていなかったが、それらに関しても新しい触媒作用機構を提案している。第7章は総括である。

以上のように、本論文では電子受容体として作用する弱い酸点と電子供与体として作用する弱い塩基点を併せ持つ高性能触媒を開発し、これらの実用化にも成功している。さらに反応機構や活性点構造に対する考察も行っており、固体酸塩基触媒設計に関して重要な知見を与えるものである。

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。