

Title	石油系炭化水素の触媒反応特性に関する研究
Author(s)	森村, 恭郎
Citation	大阪大学, 1994, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/39409">https://hdl.handle.net/11094/39409</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏 名	もり 森	むら 村	やす 恭	を 郎
博士の専攻分野の名称	博 士 ( 工 学 )			
学 位 記 番 号	第 1 1 4 2 8 号			
学 位 授 与 年 月 日	平 成 6 年 3 月 3 0 日			
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第2項該当			
学 位 論 文 名	石油系炭化水素の触媒反応特性に関する研究			
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 大 城 芳 樹			
	教 授 園 田 昇	教 授 黒 澤 英 夫	教 授 村 井 眞 二	
	教 授 甲 斐 泰	教 授 坂 田 祥 光	教 授 田 川 精 一	

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、高機能性触媒の開発を指向して、触媒の構造特性と反応場特性の解明に基づく触媒設計と、それによる石油系炭化水素の反応特性の解明に関する研究をまとめたもので、緒論、本論3章、および結言からなっている。

第1章緒論では、本研究の目的と背景を述べるとともに、触媒のキャラクタリゼーションに固体 NMR 法が優れていることを述べている。

第2章では、固体 NMR 法を主たる手段として用い、分子・原子レベルでの固体酸触媒の設計を検討し、着目原子の近距離秩序や一次配置圏の様子が触媒の構造化学を論ずる上で必須であること、また、ゼオライトの触媒の局所構造に柔軟性があることを明らかにしている。

第3章では、石油液化油からの誘導体(循環油)の水素化反応を系統的に検討し、異なった炭種に由来する数種の原料油の水素化反応での脱酸素、脱窒素および水素供与性(芳香族核水添比)の挙動や反応特性を明らかにするとともに、触媒寿命や活性劣化機構を解明している。

第4章では、石油系重質油の接触水素化反応を検討し、軽油の深度脱硫において問題となる色相変化の支配因子と制御方法を明らかにしている。さらに、重質残油の化学構造と反応特性を明らかにするとともに、実用的工業触媒の開発に成功している。

第5章結言では、本研究で得られた成果を総括している。

### 論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

基幹化学工業プロセスでは触媒反応のが重要な役割を担っており、次世代の工業用触媒として高い転化率と選択性をもち、かつ、高耐久性で長寿命の環境調和型のものが要求されている。

本論文は、触媒設計の重要因子である構造特性と反応場特性に関連する触媒キャラクタリゼーションの基礎とした高

機能触媒の開発に関する研究をまとめたもので、その成果を要約するとつぎのとおりである。

(1) 固体の NMR 法により固体酸触媒の分子・原子レベルでの化学的情報を解明し、着目原子の近距離秩序や一次配位圏が触媒活性と密接な関係にあること、さらに、アルミノホスフェート系ゼオライト触媒ではその局所構造に柔軟性があることを初めて明らかにしている。

また、この解析法を活用することによって、クリノプチロライト（天然ゼオライト）によるシクロヘキセンの骨格異性化反応の最適化が可能であることを示している。

(2) 系統的な石油液化油誘導体（循環油）の水素化反応の検討の結果、脱酸素、脱窒素、脱硫および芳香族核水素化での、供与性水素の挙動を解明するとともに、動力学や触媒の活性劣化機構の検討、および触媒寿命のシミュレーションを行い、実用的なプラント用触媒の開発に成功している。

(3) 石油系重質油の接触水素化反応において、予備硫化は触媒活性によりも寿命の延伸に効果があること、また、脱硫と脱バナジウム反応の選択性は担持金属種によって大きく影響されることを明らかにしている。

(4) 軽油の深度脱硫反応における色相変化の支配因子を解明するとともに、色相の制御方法を確率している。

(5) 重質残油の化学構造と反応特性との関係を明らかにするとともに、触媒担体としての  $\gamma$ -アルミナの細孔構造の精密制御に関して pH スイッチング法という独創的な触媒設計法を開発している。

以上のように、本論文は次世代の工業触媒として要求される特性を実現すべく、触媒のキャラクターゼーション基礎にして、新規な高機能性触媒の開発法を確率したもので、本研究で見いだされた新しい知見は、有機工業化学および石油精製工学の分野の発展に寄与するところが大きい。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。