

貴金属合成触媒および酸化物系触媒を用いた新規触媒反応の 開発と触媒構造解析

本共同研究は、平成 23 年からの継続研究で有り、貴金属触媒を用いた液相酸化脱水素反応、酸化物触媒を用いた気相脱水および酸化脱水素反応を通じ、触媒の分野における通説を再考し、新たな展開を行うこと、さらには先進分析技術を駆使し、触媒活性座の解明を行うことを目標にしている。

この年度においては、①液相反応系における貴金属触媒とマイクロリアクタの融合による酸化脱水素反応に対する新規反応場の構築と②気相反応系におけるメソポーラスシリカによる脱水および酸化脱水素反応について検討し、以下の結果が得られた。

①について概説する。マイクロリアクタは従来にない装置特性を持っているため、最近化学工学の分野で注目を浴びている。しかし、処理量が格段に少ないため、非常に多くのマイクロリアクタを利用しなければならない、ナンバリングアップという致命的な問題があった。本共同研究では、マイクロリアクタの酸素溶解に係わる特徴（スラグ流）と通常の実験器を組み合わせることにより、マイクロリアクタの利点をそのまま利用すると共に、欠点も解消する試みを行った。均一系パラジウム触媒を用いた乳酸エチルからピルビン酸エチルへの液相酸化脱水素反応を行ったところ、わずかであるが明確な新規反応場の寄与が確認されたため、更なる展開につながっている。

次に、②について概説する。メソポーラスシリカは中性である SiO_2 を基本とするが、特異な構造に由来する強い酸性質が存在することが特徴である。しかし、このような反応場を利用した反応例が少ないため、1,2-プロパンジオールの脱水およびイソブタンの酸化脱水素反応に応用した。メソポーラスシリカは酸点を持つが、その酸点を定量するために、通常用いられるアンモニア TPD より Hammett の指示薬法が有効であることを見いだした。さらに、その定量の情報を基に脱水を行うと高い触媒活性が得られることを明らかにした。また、酸化脱水素反応にはクロム修飾したメソポーラスシリカが有効であることを前年度見いだしたが、指示薬法も含めた詳細なキャラクタリゼーションにより、メソ構造よりも酸点が酸化脱水素活性に大きく影響を与えていることを示した。

このような成果により、2 報の論文を投稿することができた。