

論文 / 著書情報

Article / Book Information

題目(和文)	アルカンによる芳香族直接アルキル化反応へ向けた触媒反応系の開発
Title(English)	Development of Catalytic Reaction System for Direct Alkylation of Aromatics with Alkanes
著者(和文)	高畠 萌
Author(English)	Moe Takabatake
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12737号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:富田 育義,多湖 輝興,吉沢 道人,高尾 俊郎,横井 俊之,本倉 健,眞中 雄一
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12737号, Conferred date:2024/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第		号	学位申請者氏名		高 島 萌	
論文審査 審 査 員		氏 名		職 名			
	主査	富田 育義		教授		横井 俊之	准教授
	審査員	多湖 輝興		教授		本倉 健	特定教授
		吉沢 道人		教授		眞中 雄一	特定准教授
		高尾 俊郎		准教授			

論文審査の要旨（2000 字程度）

本論文は「Development of Catalytic Reaction System for Direct Alkylation of Aromatics with Alkanes（アルカンによる芳香族直接アルキル化反応へ向けた触媒反応系の開発）」と題して、アルカンによる芳香族化合物の直接アルキル化反応の開発と、固体酸及び担持金属粒子の触媒作用に関する研究成果が英文で記されており、5 章より構成されている。

第 1 章「General Introduction」では、アルキル化反応の重要性と、アルカンをアルキル化剤として活用することの意義が述べられるとともに、担持金属触媒や固体酸触媒の構造や触媒作用に加えて、水素スピルオーバー現象を活用した触媒反応系の設計についても言及し、過去の研究例から導かれた高性能が期待される触媒反応系と、芳香族直接アルキル化反応を達成するための触媒反応系を開発する本研究の目的が述べられている。

第 2 章「Alkylation of Benzene with Alkane over Noble-Metal-Free Solid Acids」では、低温液相有機合成において高活性であることが報告されているモンモリロナイト、特にアルミニウム交換モンモリロナイト（Al-mont）を固体酸触媒として使用した際に *n*-ヘプタンとベンゼンの反応が進行し、目的の炭素鎖 7 のアルキルベンゼンが得られることが述べられている。また、プロトン交換モンモリロナイト（H-mont）の加熱乾燥や超音波照射による層間距離の変化を活用して、生成物の選択性制御が可能となることを議論している。

第 3 章「Alkylation of Benzene with Alkane Enhanced by Slurry-Phase Interparticle Hydrogen Transfer」では、酸化剤を必要としない脱水素反応に高活性であることが報告されているハイドロタルサイト担持 Pd（Pd/HT）を、Al-mont を用いる反応系へ添加することで、アルカンとベンゼンの脱水素カップリング反応が大幅に加速されることが述べられている。反応実験や分光測定の結果から、この反応系では、Al-mont にてアルカン活性化及びアルキルベンゼン生成が生成しており、その際に生成した原子状水素が、触媒粒子間をスピルオーバーすることで Pd/HT へと移動し、0 価の Pd 粒子上で再結合する反応経路が提案されている。この反応経路の存在によって、ベンゼンのアルキル化反応が加速されることが議論されている。さらに、*n*-ヘプタン以外の様々なアルカンと芳香族の反応においても本混合触媒系を適用し、それぞれのアルカンの反応性について述べられている。

第 4 章「Development of Catalyst Mixtures System with Solid Acid and Supported Platinum for Dehydrogenative Coupling of Alkanes and Aromatics」では、固体酸と担持金属を用いる混合触媒系の性能向上のため、Pd/HT に代わる担持金属触媒の探索について記述されている。Pd/HT に代わって HT 担持白金粒子（Pt(0)/HT）を添加することでアルカンとベンゼンの反応がさらに加速されることが報告されている。*n*-ヘプタンとベンゼンの反応において、Pt(0)/HT とモルデナイトを混合すると、水素の再結合がアルカンの活性化と競合する程度まで加速されている。また、生成物の選択性がゼオライトによって制御されることが示されており、*n*-ヘプタンではとベンゼンの反応では、モルデナイトを用いて 99%以上の目的生成物の選択率が達成されるなど、ゼオライトの構造とアルキルベンゼン選択性の関係が議論されている。

第 5 章「General Conclusions」では、本論文の各章で得られた結果の総括が記述されている。

以上を要するに、本論文では精密合成のための活性化が困難とされているアルカンを直接活性化し、アルキルベンゼンを合成することに成功し、この反応が固体酸触媒あるいは複数の触媒の混合系で進行することを見出し、触媒系の高性能化へと展開しており、工学上貢献するところが大きい。よって本論文は、博士（工学）の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。