

氏名	石原 由美子
授与した学位	博 士
専攻分野の名称	工 学
学位授与番号	博 乙 第 3333号
学位授与の日付	平成11年3月25日
学位授与の要件	博士の学位論文提出者 (学位規則第4条第2項該当)
学位論文の題目	Fundamental Study on the Decomposition Mechanism of Polymers over Solid Acid Catalyst (固体酸触媒による高分子分解機構に関する基礎研究)
論文審査委員	教授 阪田 祐作 教授 島村 薫 教授 宇根山 健治

### 学位論文内容の要旨

高分子の分解反応には熱分解法と接触分解法がある。しかしながら、接触分解の基礎研究は熱分解に比べて著しく少ない。

本研究はポリオレフィンのシリカーアルミナ存在下およびポリスチレンの塩化アルミニウム存在下における接触分解に関する基礎的研究とそれを応用した廃プラスチック油化に関する実証運転結果をまとめたものである。

ポリエチレンとポリプロピレンの接触分解は、低分子カルボニウムイオンの分子間水素引き抜きと主鎖末端カルボニウムイオンのback biting(分子内転移) および生成した主鎖上3級カルボニウムイオンの $\beta$ -切断(分子量低下) からなることがわかった。また、ポリエチレンとポリプロピレンの接触分解で生成する多量の揮発物は分子量低下過程で生成したオリゴマーおよび液成分の再分解によるもので、高分子主鎖末端から直接的に生成する反応経路は否定出来ることが明らかになった。

さらに、これらの反応でのBrønsted酸の寄与を塩化アルミニウム触媒を用いたポリスチレンの接触分解によって調べた。その結果、高分子主鎖に付着した水分の影響が重要であることが認められた。

以上の知見を連続操作の廃プラスチック油化装置に応用したところ、シリカーアルミナ触媒存在下での廃ポリエチレンの接触分解では重質分を少し含む多分岐の軽質油が生成した。

とくに、廃プラスチックの油化装置では、温度勾配の影響と炭化物(コーキング)抑制の問題が実用化の障害になっていたが、製作した反応器は両者がともにほぼ解決された。基礎研究によって得られた実験結果は、廃プラスチックの再資源化における装置開発および生成物制御のために有用な知見として利用することが出来た。

## 論文審査結果の要旨

高分子の分解反応は廃プラスチックの再資源化（フィードストック化）の観点から精力的に研究されている。その中でも触媒を用いた接触分解は熱分解のような過酷な反応条件を必要とせず、しかも処理量の大幅増加、成分制御など多くの実用的利点を有している。それだけに近年とくに期待されている分解方法である。しかしながら、その基礎研究は触媒化学的見地によるものが多く、高分子の分解反応論に基づき研究は少ない。

本論文に示された研究は高分子の触媒存在下の反応について、その接触分解機構を系統的にまとめたものである。反応は分子量変化、反応生成物の組成および炭素数分布、さらに生成物の分子構造の分析結果をもとに解析している。従来の研究は生成物分布とその分子構造に関する情報が著しく不足していただけに、本研究では数々の重要な新知見がもたらされることとなった。

本研究ではこれらの知見をもとにポリオレフィンの接触分解機構を記述し、熱分解機構との対比を明確なものにした。さらに、これらの基礎研究を応用した廃プラスチックの実用油化装置の開発とそれを用いた実証運転を行い、良質な油分を高収率で回収している。同時に、肝心のコーキングの問題が克服出来たことを確認している。

これらの接触分解機構に関する基礎研究の成果は、廃プラスチックの再資源化の問題ばかりでなく、高分子と触媒との反応の理解、あるいは新触媒を設計する上でより重要な意義を持つと考えられる。

よって本論文は博士（工学）の学位論文に値するものと認める。