OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Optimal Operation of Chemical Reactor with Catalyst Fouling
Author(s)	Noda, Hideo
Citation	大阪大学, 1975, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/24550
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

【52】

氏名・(本籍)	野田秀夫
学位の種類	工学博士
学位記番号	第3377号
学位授与の日付	昭和50年3月25日
学位授与の要件	基礎工学研究科化学系 学位規則第5条第1項該当
学位論文題目	**触媒劣化を伴う反応装置の最適操作**
論文審査委員	(主査) 教授 大竹 伝雄 (副査) 教授 寺西士一郎 教授 笛野 高之 教授 樺田 栄一 教授 坂和 愛幸 助教授 東稔 節治

論文内容の要旨

本論文では，イソペンタン脱水素反応において，コーク付着（炭素質物質）による触媒劣化及び反応機構を考慮した反応モデルを提出し，反応パラメーターを精度よくもとめる方法を確立した。この反応モデルを用いて反応器の最適温度操作を理論的に検討し，この結果にもとづいて実験をおこない，劣化を伴なう反応の最適政策に考察を加えた。

第1章では，等温管型反応器を用い，クロミアーアルミナ触媒によるイソペンタン脱水素反応を研究した。イソペンタン転化率がコーク付着とともに減少し，コークの層内分布が反応時間とともに変化することを観測した。この反応系の反応及び劣化機構として，主反応が逐次におこり，劣化の原因となるコークが副反応として生成するとする反応モデルを提案した。反応速度定数の劣化による減少を場所の関数で表示するために，コーク付着量の一次関数で表わし，この反応パラメーターを非線型最小自乗法で定めた。

触媒粒子が大きくなると粒内拡散抵抗の影響により，反応器の転化率やコーク付着量分布が変化する。第2章では，第1章でもとめた反応モデルをもちいて粒内拡散抵抗の反応におよぼす影響を検討した。触媒粒子内のコーク付着が一様に増加することを実測した。反応を伴なわない場合の触媒の粒内拡散係数を測定し，付着コーク量の一次関数で表わされることを確かめた。反応の転化率及びコーク付着量を触媒の粒径を変えて実測し，粒内拡散抵抗を考慮した反応モデルによる計算値と比較し，よく一致することを確認した。

第3章では，第1章で得られた反応モデルをもちいて触媒劣化を伴なう反応系の最適温度操作を等温，非等温，多段型の三種類の反応器について理論的に検討を加えた。これまでの研究の多くは最大

収率を得ることを目的としているが，ここでは触媒の後処理を考察し，コーク蓄積を最小にする項を含めた。最適政策を得るために最大原理を適用した。収束法としてgradient法とextremal法を併用するalgorithmを示した。その結果，イソペンタンの転化率を一定に保つように温度操作をおこなう事が最適であることを示した。

第4章では，先に得られた反応モデルで等温反応器の最適温度操作を実験的に検討した。前章で示した計算方法でもとめた最適政策になるように反応器を設定し，出口でのイソペンタン，イソペンテン，イソプレンを測定し，層内のコーク付着量も実測した。実測値と計算値との一致が良好なことより，等温反応実験で得られた反応モデルが非定常操作の予測や最適政策に適用できることを示した。

論文の審査結果の要旨

本論文は，同体触媒による炭化水素の脱水素反応について反応及び劣化機構を速度論的に解析し，それに基づいた反応装置の最適操作を理論的，実験的に検討したものである。

イソペンタンの脱水素反応において，コーク析出に伴なう触媒劣化と生成物分布からこの過程に対する反応速度式を提出し，速度パラメーター，劣化係数の算出法を開発した。さらに，触媒粒子内拡散過程にもとづく劣化と反応選択性の関係から，触媒粒子内の有効拡散係数とコーク量との相関を実験的に明かにした。これらの結果から，3種の触媒反応装置の最適条件を評価関数を用いて，最大原理に従って求め，これら解析結果を実測値と比較，検討し，その妥当性を確認した。

このようにして，確立された解析法とその成果は，反応装置の最適化の基礎として寄与するところ大きく，博士論文として価値あるものと判断される。