The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	固体触媒の劣化と再生に関する工学的研究 : n-ブタン脱水素反応における触媒の劣化と再生
Author(s)	菅, 健一
Citation	大阪大学, 1967, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/29253
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、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

【10】

氏名・(本籍)	菅　健一（すが　けん　いち）
学位の種類	工学博士
学位記番号	第 1196 号
学位授与の日付	昭和42年3月28日
学位授与の要件	工学研究科応用化学専攻 学位規則第5条第1項該当
学位論文題目	**固体触媒の劣化と再生に関する工学的研究 —n-ブタン脱水素反応における触媒の劣化と再生—**
論文審査委員	(主査) 教授 大竹 伝雄 (副査) 教授 小森 三郎　教授 三川 礼　教授 松田 住雄 教授 堤 繁　教授 戸倉仁一郎　教授 大河原六郎 教授 新良宏一郎　教授 吉川 彰一　教授 阿河 利男 教授 角戸 正夫　教授 桜井 洸　教授 守谷 一郎

論文内容の要旨

本論文は固体触媒の劣化を伴なう反応装置の特性を解析する上での基礎研究として，n-ブタンの脱水素反応をとりあげ，固定層型反応装置の非定常状態を解析することを目的として行なったもので，緒論，本文4章および結論からなっている。

緒論においては，触媒劣化が反応装置の操作におよぼす影響について考察するとともに，固体触媒の劣化と再生に関する従来の研究結果の概略を述べ，本論文の研究意図を記述している。

第1章では，n-ブタンの脱水素反応における固体触媒の劣化現象を検討し，触媒劣化を考慮した反応速度論的考察を行なっている。すなわち，触媒劣化の原因となるコークの生成はn-ブタン脱水素反応によって生じたn-ブテンに基づくこと，触媒劣化は触媒活性点上のこのコークの被覆率に比例すること，コークの生成は触媒劣化に無関係におこることなどを明らかにし，触媒劣化を考慮した反応速度式を得ている。

第2章では，粒子内拡散が触媒活性の低下を伴う反応速度におよぼす影響について考察している。従来の反応速度におよぼす粒子内拡散の影響のみを考慮した触媒有効係数の概念を拡張して，劣化をも考慮した総括触媒有効係数を導入することによって，固体触媒の特性を解析している。さらに実験的に，コーク付着によって触媒活性が劣化すると同時に，粒子内拡散も低下することを明らかにし，理論的に求めた総括触媒有効係数の経時変化は実測値とよく一致することを明らかにしている。

第3章では，このようにしてコークの付着によって劣化した触媒の再生反応について述べている。すなわち空気による付着コークの燃焼機構を解析し，この反応の律速段階は反応完結部を通過する酸素の拡散過程であることを明らかにし，これにもとづいて，コーク燃焼速度式を得ている。

第4章では，触媒劣化を考慮した場合の固定層型触媒反応装置の特性の解析を行なっている。先の第1章および第2章で得た劣化を考慮した反応速度式を用いて，理論的に反応装置内の固体触媒の活

性度分布および反応成分の濃度分布を求め，これと実測値とを比較し，これらがよく一致することを確認している。また，平均活性度を導入することによって，選択性についても検討している。

結論では，本文の内容を総括している。

論文の審査結果の要旨

触媒劣化を伴なう反応系では，反応経過時間とともに，反応率ならびに選択性が変化する。本論文では，反応装置のこのような特性をn-ブタンの脱水素反応について，理論と実験の両面から解析を行なったものである。

まず，劣化の原因となるコークの生成過程を解析し，速度論的検討を加え，さらに粒子内拡散の影響をも考慮した総括触媒有効係数の概念を提出し，その経時変化を明らかにしている。つぎにこのようにして劣化した触媒の再生反応について，コーク燃焼機構を解析することによって，その律速段階にもとづいた再生反応速度式を得ている。これらの解析結果にもとづいて，触媒層内の触媒活性分布および反応成分の濃度分布の経時変化を理論的に解析し，実験結果との比較によって，その理論の合理性を確認するとともに，触媒劣化を伴なう場合の固定層型反応装置の効率の低下の状態を明らかにしている。

これらの解析結果はさらに触媒劣化を伴なう反応操作における制御の問題，触媒再生の最適時期決定などの問題解決の資料となるもので，工業上または学術上貢献する所が大である。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。