

Title	気液接触反応過程の速度論的解析
Author(s)	坂井, 徹
Citation	
Issue Date	
oaire:version	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/31889">https://hdl.handle.net/11094/31889</a>
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、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> をご参照ください。

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

氏名・(本籍)	坂井徹
学位の種類	工学博士
学位記番号	第 4103 号
学位授与の日付	昭和 52 年 12 月 8 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 2 項該当
学位論文題目	気液接触反応過程の速度論的解析
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 片山 俊 教授 笛野 高之 教授 樺田 栄一

### 論 文 内 容 の 要 旨

固体触媒による気液接触反応操作において収率および選択率におよぼす因子は現象の複雑さを反映して数多くあるが、基本的には気液および液固界面近傍の反応物質の移動過程、触媒表面上の化学反応過程と反応装置内の気、液あるいは固体粒子の流れ状態に帰着する。また一般に均一、不均一系をとわず触媒による化学反応過程は触媒活性の定常性、活性の経時変化などの影響をうけることが多い。

本論文は、触媒表面上の化学反応速度ならびに異相関の物質移動速度と操作条件との間の相関関係を担持パラジウム触媒による液相水素化反応について明らかにし、またパラジウム塩触媒による液相酸化をモデル反応として定常触媒活性が維持できる反応条件を定量的に明らかにして、これらの解析をもとに気液接触反応操作の合理的な設計の基礎的指針を得ることを研究目的とした。

第 1 章においては、まずフェノールのシクロヘキサノールへの水素化反応の速度解析を行なった。本反応はシクロヘキサノンを生成物および出発物とする二つの反応にわけて考察することができ、非線型最小二乗法によりそれぞれの反応の速度式の作成、速度定数および吸着平衡定数の算出、反応機構などを明らかにした。つぎにシナムアルデヒドの水素化反応を速度論的に解析し、反応特性を明らかにした。本反応は並発、逐次反応から成り、前節で展開した解析法を適用し、生成物質の影響を考慮した経時変化に対応する各反応径路の速度式を導出した。また中間生成物単独の水素化反応をあわせて検討した。なお反応物質の導入順序の相違により選択率が異なったが、この点についても考察した。

第 2 章においては、通気攪拌槽における液相水素化反応において、しばしば表面反応抵抗との和として実測される液固境膜内の物質移動抵抗の分離方法を提示するとともに、並発反応の各操作条件に

おける選択率の推算法を導出し、あわせて装置特性の物質移動抵抗への影響を明らかにした。また、先に展開した解析法を懸濁気泡塔における反応に適用し、通気攪拌槽における結果と比較し、両者の特徴を明らかにした。

触媒工学の重要な問題として触媒活性保持と反応条件との関係に関するものがある。第3章においては、この点を明らかにするために一例として塩化パラジウム触媒を使ったエチレンのアセトキシ化における反応速度解析を行ない、定常触媒活性あるいは触媒失活の反応条件を規定する定量的関係を誘導した。

### 論文の審査結果の要旨

本論文は、気液接触反応操作における拡散過程と表面反応との関連性についての一連の研究結果をまとめたものである。まず、拡散抵抗の省略できる反応条件で、水素化反応の反応速度を吸着項を考慮した速度式で表わし、非線形最小二乗法によってその諸定数を算出し、その反応機構を明らかにしている。ついで総括反応速度から拡散抵抗を分離する方法を提出し、操作条件と拡散抵抗の関係を定量的に表現している。あわせて各操作条件における選択率の推算法を導いている。さらに、触媒活性を定常に保つための定量的関係を誘導している。

これらの研究は、気-液接触反応操作に関する研究分野に重要な知見を加えたものであり、博士論文として価値あるものと認める。