九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

Multiphase Catalysis and Microfluidic Reaction Mechanism Over Paper-Structured Catalysts

本間, 太一

https://doi.org/10.15017/1500784

出版情報：九州大学, 2014, 博士（農学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：全文ファイル公表済

氏　　名　：　本間　太一

論文題名　：　**Multiphase Catalysis and Microfluidic Reaction Mechanism Over Paper-Structured Catalysts**
（ペーパー構造体触媒による多相系触媒反応とマイクロ流体場における反応機構）

区　　分　：　甲

論　文　内　容　の　要　旨

持続的発展可能な環境共生社会の構築に向け、化学産業においても省エネルギーで低環境負荷の物質変換プロセスへの要求が高まっている。特に、高い汎用性と実用性から、固体触媒と分子状酸素を用いる流動場での酸化反応に注目が集まっている。本研究では、紙（ペーパー）のファイバーネットワーク構造に特徴的なマイクロメートルオーダーの細孔構造を反応場とすることで、気体－液体－固体の３相が共存するマイクロ流体場での触媒反応の高効率化と反応機構の解明を試みた。

まず、紙抄き技術の応用により、高強度アルミナ繊維をペーパー状に成型し、その表面に大きな比表面積を持つアルミナ担体を固定化することで、ルテニウム水酸化物触媒の効率的な担持に成功した。調製したペーパー触媒は、約３０マイクロメートルの細孔構造を有する繊維ネットワーク構造を持ち、ルテニウム触媒がマイクロ空間内に均一に分散担持されていた。気液固の３相流通型固定床反応装置にて、酸素を酸化剤とするクリーンなアルコール酸化反応を種々検討したところ、既存のペレット触媒やビーズ触媒と比較して、ペーパー触媒は著しく高い反応効率を示し、繰り返し反応を行っても触媒性能が維持された。

次に、ペーパー触媒の高い触媒性能について、そのマイクロメートルオーダーの空隙構造に着目し、流体力学・反応工学的な流れ場の解析によって機構解明を試みた。トレーサー物質を用いたリアクター内部における液相の挙動解析により、ペーパー触媒はビーズ触媒に対して均一な滞留時間の分布を有し、ファイバーネットワーク内部への高い液の拡散性が示された。また、紙の内部ネットワークに担持された触媒表面では、ビーズ触媒と比べて１桁薄い約１０マイクロメートルの液膜が、ガス流量に依らず形成されることを見出した。すなわち、高ガス流量条件下で気液固３相界面における効率的な基質供給が可能になることで、非常に高い触媒反応性が発現することが示唆された。ペーパー構造体特有のマイクロ流体場における不均一系触媒反応機構の一端を明らかにした。

さらに、より複雑な反応経路を有する無溶媒系のアルコール酸化反応において、ペーパー触媒のマイクロ構造を主要因とする反応選択性と物質移動性の相関を検証した。ペーパー触媒を用いることで、酸素存在下で優位に進行する酸化反応経路がより選択的に進行し、他の固形触媒に見られるガス供給律速に起因する副反応経路が抑制可能であることを示した。

以上のように、紙の基本構造であるファイバーネットワーク空間のマイクロメートルオーダーの細孔構造を触媒反応場とすることで、化学産業で用いられる汎用管型反応器の内部に、気液固３相反応系で優れた物質変換を可能にするマイクロ流体場を創成することに成功した。また、ペーパー内部の物質移動解析により、高い反応性と選択性の発現機構を明らかにした。ペーパー構造体触媒は、環境に優しいモノづくり産業におけるグリーンな物質変換プロセスを実現する実用的な触媒構造体として大きな期待が持たれる。