

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 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)			
論文調査委員	主 査	九州大学	教 授	北岡 卓也
	副 査	九州大学	教 授	堤 祐司
	副 査	九州大学大学院工学府	准教授	白鳥 祐介

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は、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空隙構造を反応場とすることで、気体－液体－固体の三相が共存するマイクロ流体中での触媒反応の高効率化と反応機構の解明を試みたものである。

まず、紙抄き技術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の効率的担持に成功している。調製したペーパー構造体触媒は平均細孔径が約 $30\ \mu\text{m}$ の空隙構造を持ち、ルテニウム成分がマイクロ空間内に均一に分散担持されていた。気液固混合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に供したところ、既存のペレット触媒やビーズ触媒と比べてペーパー構造体触媒は著しく高い反応効率を示すことを見出し、繰り返し反応後も触媒性能が維持されていた。

次に、ペーパー構造体触媒の高い触媒性能について、特徴的なマイクロ空隙構造に着目し、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ている。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、ペーパー構造体触媒はビーズ触媒に対して均一な滞留時間分布を有しており、ファイバーネットワーク内部への高い液の拡散性を初めて実証した。また、紙内部に担持された触媒表面の液膜が、ビーズ触媒と比べて一桁薄い約 $10\ \mu\text{m}$ となり、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、気液固三相界面における効率的な基質供給と界面反応が起きることで、特異的に高い触媒反応性が発現することを明示し、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解明した。

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、ペーパー構造体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ている。パラジウム担持ペーパー構造体触媒を反応場とすることで、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する現象を見出し、他の固形触媒に見られるガス供給律速による酸素不足状態で進む副反応経路を、ペーパー構造体触媒では大幅に抑制可能であるという、触媒プロセス工学における新コンセプトを提示した。

以上要するに、本論文は、紙の特徴であるマイクロメートルオーダーの空隙を触媒反応場とすることで、化学工業で重要な気液固三相系での物質変換反応の効率化に成功したものである。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に必須のグリーンな物質変換を可能にする新規触媒構造体として注目を集めており、触媒化学工学および生物資源化学の発展に寄与する価値ある業績と認める。よって、本研究者は博士（農学）の学位を得る資格を有するものと認める。