

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	マイクロ波照射下固体粒子充填層における局所高温領域形成メカニズム解明とその現象に起因する化学反応促進
Title(English)	
著者(和文)	羽石直人
Author(English)	Naoto Haneishi
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10777号, 授与年月日:2018年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:和田 雄二,鈴木 榮一,大友 明,一杉 太郎,山中 一郎,岡本 昌樹
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10777号, Conferred date:2018/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	応用化学	専攻	申請学位 (専攻分野)： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名： Student's Name	羽石 直人		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	和田 雄二	
			指導教員 (副)： Academic Supervisor (sub)	鈴木 榮一	

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文では、化学プロセスの中で重要な役割を果たす固定床流通式反応や金属酸化物の還元など、固体粒子充填層内で起こる化学反応に対するマイクロ波照射の影響について論じた。マイクロ波照射下においては固体粒子充填層内に、通常の加熱方法では実現し得ない温度分布を発生させることが、これらの化学反応の促進に強く寄与していることを示した。

第1章「序論」では、マイクロ波照射下における固体粒子充填層内で発生する温度分布を解析する必要性を論じた。

第2章「マイクロ波照射下固定床流通式反応における触媒層全体のマクロな温度分布を反映した反応速度解析」では、固定床流通式反応に対してマイクロ波照射を適用した際に生じる触媒層全体のマクロな領域における温度分布に着目し、検討を行った。モデル反応であるエチルベンゼンの脱水素反応中のマグネタイト触媒層内に、マイクロ波照射下では、中心部分の温度が高く、外側に向かうにしたがって温度が低下する温度勾配が発生することを観測した。また、そのような温度分布を有限要素法によるシミュレーションを用いて再現し、その温度分布が発生している状態での反応速度を計算した。その結果、計算上の反応速度よりも実際の実験で得られた反応速度の方が36%高く、マイクロ波照射下での反応においては、触媒層全体のマクロな温度分布に起因する以上の反応促進が起こっていることを示唆した。

第3章「マイクロ波照射下固定床流通式反応における触媒粒子スケールの電磁場分布に着目した温度分布の解析」では、マイクロ波照射下の固体粒子充填層内に発生する電磁場分布および温度分布を、粒子ひとつひとつに着目して検討を行った。粒子の充填状態を反映するために、触媒粒子を模した球を多数配列させることで触媒層として表現したモデルを用いた新たなシミュレーションを実行した。触媒粒子同士の接触点近傍に電場が集中することで、マイクロ波のエネルギーの大半は粒子同士の接触点において熱に変換されている事が示され、その結果、接触点で局所的に高温状態が形成されていることがわかった。これらの局所高温領域の形成は、出力の増加、直径の増大、または圧粉体などのより低い熱伝導率を有する物質の使用により顕著になった。さらに、発光分光器を用いたモデル加熱実験と併せた検討により、この局所高温領域における熱の集中度合いは、電場振動方向および粒径に依存することを実証した。この局所高温領域が触媒粒子内において発生することで、化学反応の活性が向上したと考えられ、この現象はマイクロ波照射が、通常の加熱方法では達成し得ない温度分布を反応系内において生じさせているという点で重要である。

第4章「接触点発熱現象を利用したマイクロ波照射下金属酸化物還元反応の解析」では、粒子同士の接触点が反応点となるような化学反応、すなわち酸化銅あるいは酸化鉄の炭素還元に対してマイクロ波照射を適用し、熱重量分析を行うことで、還元反応開始温度を検討した。マイクロ波照射下での反応では、酸化銅および酸化鉄の両者とも通常加熱の場合よりも大きく還元反応開始温度が低下した。炭素の粒径や試料に加える圧力を変化させた実験を行い、マイクロ波照射下において粒子同士の接触点が反応に対して重要であることを示した。さらに、モデル試料を用いた加熱実験およびシミュレーション解析によれば、炭素の高い導電率により金属酸化物との接触点近傍に強い電場が発生し、金属酸化物において局所高温領域が形成することを明らかにした。

第5章「粉体試料内部及び試料間の温度解析シミュレーションの開発」では、実際の反応系におけるナノ・マイクロメートルサイズの粒径を対象とした、電場・温度分布予測シミュレーションシステムの構築を行った。

第6章「総括」では、本研究の成果をまとめた。

以上、本論文ではマイクロ波照射下の固体粒子充填層内の電磁場分布および温度分布に着目し、マイクロ波照射中の化学反応を促進する要因である、電場が集中することに起因する局所高温領域の形成メカニズムを明らかにした。本研究は、固体粒子充填層内反応に外場としてマイクロ波照射を適用することで、それらの反応プロセスを大幅に革新できる可能性を拓いた。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)
Doctoral Program

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻 : Department of	応用化学	専攻	申請学位 (専攻分野) : Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名 : Student's Name	羽石 直人		指導教員 (主) : Academic Supervisor(main)	和田 雄二	
			指導教員 (副) : Academic Supervisor(sub)	鈴木 榮一	

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

In this paper, the influences of microwave irradiation were discussed on chemical reactions occurring within the solid particles packed beds. In particular, fixed bed flow reaction and reduction of metal oxides were examined under microwave irradiation.

The dehydrogenation reactions of ethylbenzene or 2-propanol on a magnetite catalyst were proceeded under microwave irradiation as model reactions. The temperature gradient was generated in the magnetite catalyst bed under microwave irradiation; the highest temperature occurred at the core of the catalyst bed and it decreased toward the outside.

The temperature distribution in the packed bed under microwave irradiation was studied by a coupled simulation of the electromagnetic fields and heat transfer in a model catalyst bed composed of spherical catalysts. When the model catalyst bed was heated by microwaves, specific high-temperature regions were generated at the vicinal contact points of the catalyst particles due to the concentrated electric field. The local high temperature regions at the contact points of particles were also observed directly during the microwave heating of silicon carbide spheres by in situ emission spectroscopy. The generation of local heating at the contact points between the catalyst particles is a key factor for enhancing fixed-bed flow reactions under microwave irradiation.

The reduction reactions of cuprous oxide or magnetite with carbon were examined by thermogravimetric analysis under microwave irradiation. The onset temperatures of the reduction reactions were decreased by applying the microwave irradiation. The simulation analyses and microwave heating experiments using model samples revealed that local high temperature regions were formed at the vicinity of the contact points between the metal oxides and carbon. The microwave irradiation effectively worked on the reduction reaction because the energy concentrated on the contact points which was the reaction points.

These results will lead to the design of a novel chemical process that controls the specific high temperature regions induced by the concentration of the electric fields under microwave irradiation.

備考 : 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意 : 論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).