



Title	Studies on the Development of Utilization Technology of Heavy Hydrocarbons
Author(s)	上田, 耕造
Citation	大阪大学, 1991, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/37643">https://hdl.handle.net/11094/37643</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

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

氏名・(本籍)	上 田 耕 造
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	第 9789 号
学位授与の日付	平成3年5月2日
学位授与の要件	学位規則第5条第2項該当
学位論文名	Studies on the Development of Utilization Technology of Heavy Hydrocarbons (重質炭化水素資源の新規利用技術開発に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 野村 正勝 (副査) 教授 松田 治和 教授 池田 功 教授 足立 吟也 教授 岡原 光男 教授 米山 宏 教授 永井 利一

### 論文内容の要旨

本論文は、「重質炭化水素資源の新規利用の技術開発に関する研究」の成果をとりまとめたもので、3章より構成されている。利用技術としては重質炭化水素の炭素利用率が最も高い熱分解法を採用し、最大の問題であるコーリング発生の原因を解明し、その防止対策を見いだすことにより、従来のプロセスでは用いられなかった反応領域および反応方法で、コールタールや石油系減圧残油などの価値の低い重質炭化水素をクリーンな軽質油と重質分に効率的に転換するプロセスの開発に成功し、さらに生成する重質分を有用な炭素製品原料として利用する新規な方法に関して開発研究を行っている。

第1章では、HPLC(高速液体クロマトグラフィー) / FIMS (フィールドイオン化マススペクトロメトリー) と電算機によるデータ処理を組み合わせた重質炭化水素の化学構造解析手法の開発研究について述べ、石炭系重質油と石油系減圧残油のほとんどの成分についてその化学構造を明らかにしている。

第2章では、コールタールからの新規なピッチ製造プロセス (CHERRY-Tプロセス: 本論文による重質油の改質精製などの処理技術を、Comprehensive Heavy Ends Reforming Refinery と命名し、その頭文字を取ったもので、TはTarの略) と炭素製品の開発研究について述べている。特にコールタールの処理法の違いがピッチの収率や性状に与える影響、およびピッチを電極用バインダーに使用した場合の電極性能と原料ピッチの性状との相関について述べ、電極性能に与えるピッチ性状の諸因子について論じている。また本プロセスのコマーシャルプラント設計のためのスケールアップ手順と化学工学的検討について述べ、加熱炉におけるコーリングの発生要因について検討し、コーリング防止対策法について論じている。また生成油 (クレオソート油相当) のモデル化合物としてフェナントレンを対象に金属担持Y型ゼオライトを用いて水素化分解を行い、Ni-H-Y型ゼオライトが転化

率および単環あるいは2環アルキル芳香族化合物への選択率が高い触媒であることを見いだしている。

第3章では、石油系減圧残油から軽質油と重質分（固体製品）の新規な製造プロセス（CHERRY-Pプロセス：PはPetroleumの略）の開発研究について述べている。また本プロセスの反応領域での減圧残油の熱分解に伴うコーリング発生メカニズムを明らかにし、その防止対策について論じている。また本プロセスから得られる生成油と固体製品の性状の特徴について述べ、その性状と反応条件との相関について論じている。また、既存の石油精製の中にCHERRY-Pプロセスを組み込んだ場合のシステムフローを検討し、石油精製に組み込んだ場合の本プロセスの有用性について述べている。

### 論文審査の結果の要旨

重質炭化水素資源、いわゆる石炭乾留タールや石油の減圧残渣油の新規利用技術としては、水素化分解法、部分燃焼法、熱分解法が考えられるが、本論文はこのうち熱分解法を用いた利用技術の開発を行ったものである。熱分解法の問題点はコーリングの防止対策が重要であり、本論文は、石炭系および石油系重質炭化水素のコーリング発生の原因を解明し、従来のプロセスでは採用できなかった反応領域で、前者では有用な炭素製品原料を高収率で、また後者では軽質油とともに流動性に富む炭素材料を得ており、その成果を要約すると次のようになる。

- (1) 重質炭化水素は、分子量の大きい複雑な炭化水素の集合体で、その化学構造は従来平均構造という概念で議論されてきたが、本論文では高速液体クロマトグラフィーとフィールドイオン化マススペクトロメトリーを組み合わせた方法で、データの電算機による一括処理により、重質炭化水素分析システムを構築し、コールタール、石油減圧残渣油の化学組成を明らかにしている。
- (2) コールタールを直接、高温、加圧下で処理すると、コールタール中の重合しやすい芳香族成分が反応して収率よく高品質のピッチが得られることを見いだし、処理方法を変化させた場合のピッチの性状変化、またピッチを電極バインダーとして使用した場合の電極性能との相関を明らかにしている。  
また、このピッチはアルミ精錬電極用バインダー、あるいは炭素繊維原料として優れていることを明らかにしている。
- (3) 生成軽質油の水素化分解用触媒としてモデル化合物を対象に、Ni-H-Y型ゼオライトの有用性を明らかにしている。
- (4) 上述の熱分解プロセスは、コールタールを500°C近くまで加熱するためコーリングが非常に起こり易い温度域にあるが、加熱管でのコーリング生成速度の解析から、その支配要因を明らかにし、コーリングの軽減に成功している。
- (5) 石油系残油はビスブレーキングとコーラーの中間の温度で熱分解を行なうことにより、軽質油と、熱安定性および流動性に富む重質分を連続的に製造することに成功している。また、重質分の性状を詳しく調べ、これが鉄鋼用強粘結炭代替品として優れていることを明らかにするととも

に、実炉テストによりその有効性を検証した。なお、重質分のうち、固形分については、粒状活性炭原料、ピッチ分は炭素繊維原料等としての用途を開発している。

(6) 上述の熱分解プロセスでは、数%の石炭を加え、熱分解により生成するメソフェーズが石炭粉に付着することによって、反応器内でのコーティング問題を解決している。

以上のように本論文は、重質炭化水素の構造化学的研究を基に、その新規利用法の開発に成功しており、石炭および石油化学工業や炭素材料化学の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。