

Title	STUDIES ON PRODUCTION AND PROPERTIES OF MESOPHASE PITCHES FROM HEAVY HYDROCARBONS
Author(s)	井田, 徹
Citation	大阪大学, 1995, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/39538
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"〉 大阪大学の博士論文について 〈/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	井 田 徹 ^{とおる}
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 1 9 7 6 号
学 位 授 与 年 月 日	平 成 7 年 5 月 1 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第2項該当
学 位 論 文 名	STUDIES ON PRODUCTION AND PROPERTIES OF MESOPHASE PITCHES FROM HEAVY HYDROCARBONS (重質炭化水素からのメソフェーズピッチの製造とその性状に関する研究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教授 野村 正勝 教授 足立 吟也 教授 米山 宏 教授 野島 正朋 教授 池田 功 教授 永井 利一 教授 福住 俊一 教授 松林 玄悦

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、重質油の炭化反応により光学的異方性のメソフェーズピッチを製造する際の、重質油の炭化特性と化学的性質の関係および炭化反応過程での分子構造の変化を明らかにすることを目的として実施した研究成果をまとめたものである。

序論では、本研究を始めるに至った背景および本論文の構成について述べている。第1章では、石炭系重質油としてSRC（溶剤精製炭）をとりあげ、その化学構造を検討している。SRCの主要成分であるヘキサン可溶分およびヘキサン不溶-ベンゼン可溶分は、分子量分布に大きな差があるもののその基本骨格の化学構造は類似したものであること、および架橋構造の違いなどによって分子量などが異なることなどを明らかにしている。第2章では、石油系重質油としてオイルサンドビチューメンを取り上げ、その化学的性質と炭化特性との関係を検討し、光学的異方性が広範囲に発達した組織（フロードメイン）を生成する成分（レジンA）を選択的に分離できることを見出し、その炭化反応機構を明らかにしている。さらに、炭化特性の改善に水素化脱硫前処理が有効であることを示している。第3章では、SRCから溶剤分別したレジン成分の炭化特性と化学的性質との関係を調べ、レジンBおよびレジンCがヘテロ原子含有率、特にフェノール性の酸素を多く含むために異方性組織を生成しないことを明らかにしている。これらの炭化特性を改善するためには、単なる水素化反応による前処理だけでなく、水素化脱ヘテロを行うことが効果的であることを明らかにしている。第4章では、重質油のモデル化合物としてメチレン架橋芳香族オリゴマーを用い、それらの分子構造変化から炭化反応機構を明らかにしている。これらオリゴマーの炭化過程では、平面性の高い縮合芳香環を形成できる分子構造を持つものが光学的異方性を発現することを明らかにしている。また、この縮合芳香環の拡大過程では、架橋メチレン基自身が脱水素して芳香族炭素に変化する反応、およびメチル基が新たなメチレン架橋を形成する反応が重要であることを明らかにしている。第5章では、メソフェーズ球晶の電場内での性質について検討し、炭化反応系に高電圧の電場をかけると、メソフェーズ球晶は電極周辺へ移動するものの、互いに合体しない性質を持つことを明らかにしている。第6章は、総括として全体の要約を述べている。

論文審査の結果の要旨

本論文は重質油の炭化反応により光学的異方性組織の発達したメソフェーズピッチが生成する過程について、原料の分子構造と反応性から検討したもので、主な成果を要約すると次のようである。

- (1) 石炭系重質油であるSRCと石油系重質油であるオイルサンドビチューメンの構造解析を行い前者は芳香族化合物を、また後者は長鎖アルキル基を持つ縮合したナフテン環を基本構造としていることを明らかにし、これらはいずれもメソフェーズピッチの基本構造である縮合芳香環構造の前駆体となることを見出している。
- (2) オイルサンドビチューメンから分離したレジンAが炭化反応によって光学的異方性組織の発達したフロードメイン(FD)タイプのメソフェーズピッチを生成することを示すとともに、レジンAの炭化過程の反応機構を明らかにしている。また、炭化反応で生成する低分子量成分が溶媒の働きをすることによってピッチ分子が配列(積層)しやすくなることを指摘し、アサバスカおよびコールドレイクレジンAの炭化特性の違いを明らかにしている。
- (3) SRCのレジンBおよびCの炭化特性が水素化前処理によって効果的に改善され、光学的異方性を示すことを明らかにしている。この水素化前処理の主な効果はヘテロ原子の除去であり、特に炭化反応系の流動性を低下させるOH基などの極性基の除去が炭化特性の改善にとって重要である事を見出している。
- (4) ピッチのモデル化合物として2~3環の芳香族炭化水素化合物を常圧下で炭化させるためメチレン架橋する方法を考案している。これらオリゴマーの反応機構を検討した結果、炭化反応過程で縮合芳香環を形成し光学的異方性のメソフェーズピッチを生成するか否かは原料ピッチの分子構造によって決まること、およびメチレン架橋やアルキル置換基の反応が縮合芳香環の拡大にとって重要であることを明らかにしている。
- (5) メソフェーズ球晶が直流電場内でアノード側へ移動する性質があることを明らかにしている。これは、球晶が極と赤道で分極した構造を持っているためであると推定している。

以上のように、本論文は原料ピッチの分子構造および置換基の違いがその炭化特性におよぼす影響を明らかにし、さまざまな前処理によってピッチの炭化特性が効果的に改善できることを明らかにしており、これらの成果は炭素材料化学および有機工業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。