

## 学位論文題名

## 石炭直接液化反応器における三相流動特性

## 学位論文内容の要旨

わが国では 1973 年のオイルショックを契機として各種の石油代替エネルギー開発を国家プロジェクトとして取り上げている。中でも石炭は、石油に比べて可採埋蔵量が多く、産地も分散していることから最も重要な石油代替エネルギー資源とされている。さらに石炭利用に当たっては、液体である石油資源中心の現在のエネルギー利用システムとの整合性を保つべく、石油代替油を製造する液化技術に期待が寄せられている。石炭の液化プロセスでは、予熱を含めた液化反応工程が主要工程である。液化反応器には石炭粒子と液化油の一部を混合したスラリーを高圧の水素ガスとともに予熱後、底部から吹き込む。水素ガスは高温、高圧の反応器内を気泡として通過してスラリーを混合する。したがって、反応器内のガスホールドアップはスラリーの滞留時間や混合を左右するので、反応器や操作条件の設計やスケールアップには不可欠な知見である。しかしながら、反応系が高温、高圧の気液固三相系であるため、流動特性の測定に著しい制約を受け、これまでこれについてはほとんど明らかにされていないのが現状である。そこで本研究は、液化反応器のコールドモデルにおいて種々の条件で気泡の挙動とガスホールドアップを測定し、流動特性に対する圧力の影響を系統的に明かすると同時に、回分式反応器実験とベンチスケール液化プロセスの流通式反応器実験を行って、液化反応成績に対する流動特性の影響を解明し、液化反応器の工学的設計指針を得ることを目的として行われたものである。

本論文は以下の 7 章から構成される。

第 1 章では、本研究の背景と、液化反応器の流動特性に関する既往の研究を概説し、工学的課題を摘出して、本研究の目的と本論文の構成について述べている。

第 2 章は、液化反応器コールドモデルとして高圧気泡塔を用い、常圧から 15MPa までの圧力範囲でガス吹込みノズル直上の気体の分散形態、局所気泡径および気泡ホールドアップなどを測定し、これらに及ぼす諸操作因子の影響について実験的に検討した結果について述べたものである。すなわち、ノズル直上におけるガスの分散形態が、同一ガス流速でも圧力が増加すると Bubbling, Jetting, Dispersed jetting と

変化し、これらの形態の遷移がウェーバー数とノズル径基準のレイノルズ数によって決まることを示している。さらに、気泡塔上部における気泡群の運動はノズル直上のガス分散形態と密接な関係があり、平均気泡径が上記の形態の順に減少すること、加えて平均気泡径と気泡ホールドアップは常圧においてはノズル径や気液物性の影響を強く受けるが、圧力の増加とともにこれらの影響は小さくなることを初めて明らかにしている。

第3章は、液化反応器特有の気液同時吹き込み型気泡塔の吹き込み部近傍における気泡ならびに温度分布を測定し、これらに及ぼすガスと液の流速、ノズル径の影響を明らかにし、これに基づいて吹き込み部近傍の伝熱に関するシミュレーションを行った結果について述べたものである。すなわち、同時吹き込み操作の気泡生成に対する影響は圧力の影響と類似しており、ノズル直上の噴流の広がりや気泡径はノズル径を変えることにより制御できることを、また断熱反応器底部にはデッドスペースが形成して、ホットスポットを発生する可能性があることを明らかにしている。

第4章では、気液同時吹き込み型気泡塔において固体粒子の軸および半径方向濃度分布を測定し、前章で指摘した反応器底部におけるデッドスペースの発生を、固体粒子運動に基づいて考察している。すなわち、塔底部には噴流の形成により粒子濃度の軸および半径方向分布が生じること、塔中心部における粒子の軸方向濃度分布が既存の沈降拡散モデルにより記述できることを示している。また、気液同時吹き込み操作では気泡径が減少するために粒子ベクレ数も小さくなることおよび粒子濃度が小さな場合には、未反応石炭粒子と灰粒子の運動には差が無いことも明らかにしている。

第5章では、0.1ton/day 液化プロセス反応器におけるガスホールドアップを測定し、結果を文献値やコールドモデルにおける結果と比較している。その結果、液化反応条件におけるガスホールドアップは、反応器径とは無関係にガス空塔線速度だけの関数として表されることを明らかにし、スラリーの混合を良好に保つために必要な分散器設計上の留意点について述べている。

第6章は、0.1ton/day 液化プロセス反応器で得られた反応成績を、第2～5章で明らかにした示した知見と回分式反応器により得た反応速度に関する知見にもとづいて解析した結果を述べたものである。まず、溶媒として脱晶アントラセン油、触媒として赤泥/硫黄を用いたときの太平洋炭の液化反応実験を、プロセス予熱器と、これと同等の加熱が可能なマイクロオートクレーブを用いて行い、石炭が難反応成分と易反応成分から成るとした液化反応モデルに基づいて解析し、前者に関する速度定数が溶媒中に含まれる水素供与性溶剤に濃度に依存することを明らかにしている。また、求めた反応速度定数とガスホールドアップから計算したスラリーの平均滞留時間に基づいて上記液化プロセス反応器における石炭の液化反応率を推算して実測値と比較し、液化反応器が完全混合槽に近似できることを明らかにしている。

第7章は、本論文を総括し、石炭液化プロセスの開発研究に対する本研究の寄与と今後の展開について述べたものである。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 千 葉 忠 俊  
副 査 教 授 伊 藤 博 徳  
副 査 教 授 竹 澤 暢 恒  
副 査 教 授 服 部 英

## 学位論文題名

### 石炭直接液化反応器における三相流動特性

わが国では 1973 年のオイルショックを契機として各種の石油代替エネルギー開発を国家プロジェクトとして取り上げている。中でも石炭は、石油に比べて可採埋蔵量が多く、産地も分散していることから最も重要な石油代替エネルギー資源とされている。さらに石炭利用に当たっては、液体である石油資源中心の現在のエネルギー利用システムとの整合性を保つべく、石油代替油を製造する液化技術に期待が寄せられている。石炭の液化プロセスでは、予熱を含めた液化反応工程が主要工程である。液化反応器には石炭粒子と液化油の一部を混合したスラリーを高圧の水素ガスとともに予熱後、底部から吹き込む。水素ガスは高温、高圧の反応器内を気泡として通過してスラリーを混合する。したがって、反応器内のガスホールドアップはスラリーの滞留時間や混合を左右するので、反応器や操作条件の設計やスケールアップには不可欠な知見である。しかしながら、反応系が高温、高圧の気液固三相系であるために測定に著しい制約を受け、これまでこれについてはほとんど明らかにされていないのが現状である。そこで本研究は、液化反応器のコールドモデルにおいて種々の条件で気泡の挙動とガスホールドアップを測定し、流動特性に対する圧力の影響を系統的に明かすると同時に、回分式反応器実験とベンチスケール液化プロセスの流通式反応器実験を行って、液化反応成績に対する流動特性の影響を解明し、液化反応器の工学的設計指針を得ることを目的として行われたものである。

本論文は以下の 7 章から構成される。

第 1 章では、本研究の背景と、液化反応器の流動特性に関する既往の研究を概説し、工学的課題を抽出して、本研究の目的と本論文の構成について述べている。

第 2 章は、液化反応器コールドモデルとして高圧気泡塔を用い、常圧から 15MPa までの圧力範囲でガス吹込みノズル直上の気体の分散形態、局所気泡径および気泡ホールドアップなどを測定し、これらに及ぼす諸操作因子の影響について実験的に検討した結果について述べたものである。すなわち、ノズル直上におけるガスの分散形態が、同一ガス流速でも圧力が増加すると Bubbling, Jetting, Dispersed jetting と変化し、これらの形態の遷移がウェーバー数とノズル径基準のレイノルズ数によって決まることを示している。さらに、気泡塔上部における気泡群の運動はノズル直上のガス分散形態と密接な関係があり、平均気泡径が上記の形態の順に減

少すること、加えて平均気泡径と気泡ホールドアップは常圧においてはノズル径や気液物性の影響を強く受けるが、圧力の増加とともにこれらの影響は小さくなることを初めて明らかにしている。

第3章は、液化反応器特有の気液同時吹き込み型気泡塔の吹き込み部近傍における気泡ならびに温度分布を測定し、これらに及ぼすガスと液の流速、ノズル径の影響を明らかにし、これに基づいて吹き込み部近傍の伝熱に関するシミュレーションを行った結果について述べたものである。すなわち、同時吹き込み操作の気泡生成に対する影響は圧力の影響と類似しており、ノズル直上の噴流の広がりや気泡径はノズル径を変えることにより制御できることを、また断熱反応器底部にはデッドスペースが形成して、ホットスポットを発生する可能性があることを明らかにしている。

第4章では、気液同時吹き込み型気泡塔において固体粒子の軸および半径方向濃度分布を測定し、前章で指摘した反応器底部におけるデッドスペースの発生を、固体粒子運動に基づいて考察している。すなわち、塔底部には噴流の形成により粒子濃度の軸および半径方向分布が生じること、塔中心部における粒子の軸方向濃度分布が既存の沈降拡散モデルにより記述できることを示している。また、気液同時吹き込み操作では気泡径が減少するために粒子ベクレ数も小さくなることおよび粒子濃度が小さな場合には、未反応石炭粒子と灰粒子の運動には差が無いことも明らかにしている。

第5章では、0.1ton/day 液化プロセス反応器におけるガスホールドアップを測定し、結果を文献値やコールドモデルにおける結果と比較している。その結果、液化反応条件におけるガスホールドアップは、反応器径とは無関係にガス空塔線速度だけの関数として表されることを明らかにし、スラリーの混合を良好に保つために必要な分散器設計上の留意点について述べている。

第6章は、0.1ton/day 液化プロセス反応器で得られた反応成績を、第2～5章で明らかにした示した知見と回分式反応器により得た反応速度に関する知見に基づいて解析した結果を述べたものである。まず、溶媒として脱晶アントラセン油、触媒として赤泥/硫黄を用いたときの太平洋炭の液化反応実験を、プロセス予熱器と、これと同等の加熱が可能なマイクロオートクレーブを用いて行い、石炭が難反応成分と易反応成分から成るとした液化反応モデルに基づいて解析し、前者に関する速度定数が溶媒中に含まれる水素供与性溶剤に濃度に依存することを明らかにしている。また、求めた反応速度定数とガスホールドアップから計算したスラリーの平均滞留時間に基づいて上記液化プロセス反応器における石炭の液化反応率を推算して実測値と比較し、液化反応器が完全混合槽に近似できることを明らかにしている。

第7章は、本論文を総括し、石炭液化プロセスの開発研究に対する本研究の寄与と今後の展開について述べたものである。

これを要するに、著者は、石炭直接水添液化反応器における高温高圧の気固液三相流動特性と操作条件との関係について新知見を得たものであり、石炭反応工学、化学工学の進歩に寄与するところ大である。

よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。