

NEDOL 法石炭液化パイロットプラント予熱器

および反応器における三相流動特性

学位論文内容の要旨

わが国では石油代替エネルギーを得る技術開発の一環として、石炭の直接液化プロセスの開発研究が精力的に推進されてきた。このプロセスでは、石炭を約 723 K, 15 Mpa 以上という高温高压の条件において水素化することにより直接液化し、石油に類似した液体燃料油を得ることを目的とし、プロセスはスラリー調製、液化反応、液化油蒸留および循環油水添反応の 4 つの工程から成る。これらの工程において最も操作条件が厳しい液化反応工程はいくつかの未解決な課題を抱えている。中でも、スラリー予熱器では、加熱とともにスラリー粘度が上昇すると流動が緩慢となり、伝熱速度が低下する結果、予熱管壁への粒子付着が起こり、管閉塞などの深刻な操作トラブルを引き起こす。また、液化反応器内は高温高压気液固三相系で、複雑な流動状態を呈し、ガスホールドアップや流体物性などに関する知見が不十分であるので、これが石炭の反応率や生成物の収率に与える影響を正確に把握することは難しいのが現状である。さらに、これらの主要装置のスケールアップについては、これまで大型プラントの運転結果に関する報告が少なく、設計計算の基礎となる物質収支や熱収支などに関する知見が十分蓄積されていない。本研究は、わが国において国家プロジェクトとして取り上げられた直接液化法である NEDOL 法に基づいた 150 トン/日規模のパイロットプラント予熱器と液化反応器におけるスラリー流動特性と液化反応特性を明らかにしたものであり、本論文はその研究成果を纏めたものである。

本論文は、5 章から構成される。

第 1 章は序論であり、本研究の背景、既往の関連研究、本研究の目的および本論文の構成について述べている。

第 2 章では、パイロットプラントヘアピン型予熱管内流れ方向の圧力損失と管壁および内部流体温度の変化を測定し、石炭種やスラリー濃度の影響を検討するとともに、スラリーの有効粘度および熱伝導度を推算した結果を述べている。すなわち、予熱管内スラリー有効粘度の変化を圧力損失の変化として測定し、石炭種により粘度増減の原因が粒子膨潤および溶解であるか、重質液化生成物の粒子表面への蓄積および溶解であるかが異なること、管内におけるコーキングやスケーリングは予熱管への熱流束を高および

低負荷部に分割して適正に保ち、管外表面温度を 723 K 以下に制御することにより、抑制できることを初めて明らかにしている。また、既往の研究成果に基づいて本研究における測定結果からスラリー有効粘度および熱伝導度、ガスホールドアップなど、プラント設計に不可欠な因子を解析した結果も明らかにしている。

第3章では、直径1m、高さ11mの気液固三相懸濁気泡塔型液化反応器内ガスホールドアップを、差圧法とガス遮断法の2種の方法により常温高压冷油、高温高压熱油および高温高压の3条件において測定した結果を述べている。ガスホールドアップはガス空塔速度が0.08m/s以下の範囲でガス空塔速度とともにほぼ直線的に増加するが、それ以上のガス空塔速度の範囲では増加率が急激に減少すること、ガスホールドアップに対する反応温度、圧力および石炭種の影響は小さいこと、塔径が0.175m以上になるとガスホールドアップに対する塔径の影響もきわめて小さいことを明らかにしている。さらに、反応器内流体の状態をドリフトフラックスモデルに基づいて解析し、均一気泡流であることを明らかにし、均一気泡流におけるスリップ速度とガスホールドアップの相関式を提示して、これに基づいて商業規模の液化反応器におけるガスホールドアップを予測している。

第4章では、本パイロットプラントで得た液化ナフサ、常圧軽油、減圧軽質軽油および減圧重質軽油を試料として、充填式精密蒸留塔によりASTM D-2829に従って平均沸点範囲が353～643 K の12種の狭沸点留分に蒸留、分別し、各留分の比重、平均分子量、標準蒸発潜熱、密度、粘度、比熱、熱伝導度、表面張力、蒸気圧および蒸発潜熱を測定した結果を述べている。すなわち、(1) 液化油の物性は、含まれるナフタレン、フェナントレン、ピレンなどの多環芳香族類やパラフィン類の組成に強く依存するので、組成が石炭種やプロセスにより異なること、大型の石炭液化プラントの設計のためには、循環溶剤が平衡に達した後に取得した物性データを用いる必要があることを明らかにしている。また、上記の液化油物性を既往の研究に基づいて適切に推算する液化反応シミュレータ用推算法を明らかにしている。

第5章は、本研究成果を総括したものである。

以上のように、本研究は、150トン/日パイロットプラント予熱管における圧力損失と液化反応器におけるガスホールドアップを測定し、これらを解析することによりさらに大型の商業規模の予熱器と液化反応器の設計や操作に不可欠な工学的設計因子に関する知見を明らかにしたものである。

学位論文審査の要旨

主 査	教 授	千 葉 忠 俊
副 査	教 授	荒 井 正 彦
副 査	教 授	服 部 英
副 査	助教授	林 潤一郎

学 位 論 文 題 名

NEDOL 法石炭液化パイロットプラント予熱器 および反応器における三相流動特性

わが国では石油代替エネルギーを得る技術開発の一環として、石炭の直接液化プロセスの開発研究が精力的に推進されてきた。このプロセスでは、石炭を約 720 K, 15 Mpa 以上という高温高压の条件において水素化することにより直接液化し、石油に類似した液体燃料油を得ることを目的とする。プロセスはスラリー調製、液化反応、液化油蒸留および循環油水添反応の 4 つの工程から成る。これらの工程において最も操作条件が厳しい液化反応工程はいくつかの未解決な課題を抱えていた。中でも、スラリー予熱器では、加熱とともにスラリー粘度が上昇して流動が緩慢となり、伝熱速度が低下する結果、予熱管壁への粒子付着が起こり、管閉塞などの深刻な操作トラブルを引き起こす。また、液化反応器内は高温高压気液固三相系で、複雑な流動状態を呈し、ガスホールドアップや流体物性などに関する知見がほとんど存在せず、これらが石炭の反応率や生成物の収率に与える影響を正確に把握することは困難であった。さらに、これらの主要装置のスケールアップについては、これまで大型プラントの運転が少なく、設計計算の基礎となる物質収支や熱収支などに関する知見が不十分であった。

本研究は、わが国において国家プロジェクトとして取り上げられた直接液化法である NEDOL 法に基づいた 150 トン/日規模のパイロットプラント予熱器と液化反応器におけるスラリー流動特性と液化反応特性を明らかにしたものであり、本論文はその研究成果を纏めたものである。

本論文は、5 章から構成される。

第 1 章は序論であり、本研究の背景、既往の関連研究、本研究の目的および本論文の構成について述べている。

第 2 章は、ヘアピン型予熱管内流れ方向の圧力損失と管壁および内部流体温度の変化を測定

し、石炭種やスラリー濃度の影響を検討するとともに、スラリーの有効粘度および熱伝導度を推算した結果を述べたものである。すなわち、予熱管内スラリー有効粘度の変化を圧力損失の変化として測定し、石炭種により粘度増減の原因が粒子膨潤および溶解であるか、重質液化生成物の粒子表面への蓄積および溶解であるかが異なること、管内におけるコーキングやスケリングは予熱管への熱流束を高および低負荷部に分割して適正に保ち、管外表面温度を 723 K 以下に制御すれば、抑制できることを初めて明らかにしている。また、既往の研究成果に基づいて本研究における測定結果からスラリー有効粘度および熱伝導度、ガスホールドアップなど、プラント設計に不可欠な因子を解析した結果も明らかにしている。

第3章では、直径1m、高さ11mの気液固三相懸濁気泡塔型液化反応器内ガスホールドアップを、差圧法とガス遮断法の2種の方法により常温高压冷油使用条件、高温高压熱油使用条件および高温高压液化反応条件において測定し、既往の測定結果と比較した結果を述べている。ガスホールドアップはガス線速度が0.08m/s以下の範囲ではガス線速度とともにほぼ直線的に増加するが、それ以上のガス線速度の範囲では増加率が急激に減少すること、気液平衡を考慮したガスホールドアップに対する反応温度、圧力および石炭種の影響は小さいこと、塔径が0.175m以上になるとガスホールドアップに対する塔径の影響もきわめて小さいことを明らかにしている。さらに、反応器内流体の状態をドリフトフラックスモデルに基づいて解析し、均一気泡流であることを明らかにし、均一気泡流におけるスリップ速度とガスホールドアップの相関式を提示して、これに基づいて商業規模の液化反応器におけるガスホールドアップを予測している。

第4章では、本パイロットプラントで得た液化ナフサ、常圧軽油、減圧軽質軽油および減圧重質軽油を試料として、充填式精密蒸留塔によりASTM D-2829に従って平均沸点範囲が353～643 K の12種の狭沸点留分に蒸留、分別し、各留分の比重、平均分子量、標準蒸発潜熱、密度、粘度、比熱、熱伝導度、表面張力、蒸気圧および蒸発潜熱を測定した結果を述べている。すなわち、(1)液化油の物性は、含まれるナフタレン、フェナントレン、ピレンなどの多環芳香族類やパラフィン類の組成に強く依存するので、組成が石炭種やプロセスにより異なること、大型の石炭液化プラントの設計のためには、循環溶剤が平衡に達した後に取得した物性データを用いる必要があることを明らかにしている。また、上記の液化油物性を既往の研究に基づいて適切に推算する液化反応シミュレータ用推算法を明らかにしている。

第5章は、本研究成果を総括したものである。

これを要するに、著者は、150トン/日石炭液化パイロットプラント予熱管における圧力損失、液化反応器におけるガスホールドアップならびに生成液化油の物性を測定し、これらを解析することによりさらに大型の商業規模プラントの設計や操作に不可欠な工学的設計因子に関する知見を明らかにしたものであり、石炭転換工学の進歩に貢献するところ大なるものがある。

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。