

# 公資研(資環研)の石炭液化研究 —石炭液化技術開発プロジェクトに貢献したものとは?—

斎藤郁夫

資源環境技術総合研究所

## 要旨

公害資源研究所(公資研)/資源環境技術総合研究所(資環研)では、1920年代の燃料研究所(燃研)時代に石炭の水素添加反応の研究を実施して以来、資源技術試験所(資技試)時代の溶剤処理による膨潤炭の製造技術開発、公資研時代の石炭抽出物の化学的構造に関する研究等々、終始一貫石炭関連研究を推進してきている。

こうした石炭の水素添加および溶剤処理の基礎的ならびに応用的研究に対する高いポテンシャルを背景に公資研(資環研)はサンシャイン計画スタート当初より溶剤抽出液化(のちに溶剤水添液化へ展開)技術開発の一翼を担うこととなり「石炭の溶剤処理技術の基礎研究」をスタートさせている。

液化三法がNEDOL法へ統合した1984年以降は「石炭の液化反応と生成物の改質利用の研究」を推進し、石炭液化反応に関する基礎研究、液化生成物の改質研究、液化油の評価研究等を実施してきている。

本稿は石炭液化技術の発展の推移や石炭の液化について概説するとともに公資研(資環研)で実施された石炭液化研究が、何を目指し、推進し、どう展開したのか、溶剤抽出液化、小型流通式石炭抽出装置の運転研究、液化油の改質に関する研究、生成物の利用それぞれについて、「石炭液化技術開発プロジェクトに貢献したものとは?」という視点でまとめたものである。

1. はじめに
2. 石炭液化技術の発展の推移
3. 石炭液化技術のキーとなった主要なポイント
  - 3.1 石炭液化とは
  - 3.2 公資研(資環研)における石炭液化研究
    - 3.2.1 石炭の溶剤抽出液化
    - 3.2.2 小型流通式石炭抽出液化装置の連続運転研究
    - 3.2.3 液化油の改質反応の研究
    - 3.2.4 生成物の利用の研究
4. その後の推移
5. まとめ
6. 謝辞
7. 参考文献・資料
8. 著者略歴

## 1. はじめに

「黒いダイヤ」といえば、いまや最上等種で1千万円を超える大間産クロマグロや中華料理の高級食材としての黒ナマコあるいは子供たちにも大人気の国産「オオクワガタ」等を指し、さらに身近なものに羊羹や黒糖などもあるが、いわゆる「おじさんたちの世代」(シニア世代)では「黒いダイヤ」といえば当然の如くそれは石炭のことである。

石炭は太古の植物が地中に埋没し長い年月の間に地圧や地熱等によりいわゆる石炭化が進み生成されたもので、古くから燃える石として燃料に使われ、また身近な例では石炭ストーブや蒸気機関車に広く利用されてきた。最盛期には国内で年間約5500万トンも生産され、かつてはエネルギー資源の主役を演じてはいたが、やがて流体革命で石油にとって代われ我が国の石炭産業は衰退していく。

2014年現在で発電用に約1億1千万トン、製鉄用に約7千2百万トン、合計約1億8千万トンもの石炭が輸入されている<sup>1)</sup>ことはあまり知られていない。石炭を発電に使用する際、燃焼による炭酸ガス排出で地球環境問題への影響が大という批判があるものの、依然として国内産業を下支えしている重要なエネルギー資源であることは紛れもなく、ついであるが我が国の石炭火力発電の発電効率は世界最高水準の域に達していることを強調しておきたい。

流体革命時の主役であった石油を海外にほとんど依存していた我が国は第4次中東戦争後の1973年のオイルショックでエネルギー供給体制の脆弱性を経験し、その弱点を克服すべく、1974年に我が国最初の長期的・総合的な新エネルギー技術開発計画であるサンシャイン計画を発足させている。

サンシャイン計画は「エネルギーの長期的な安定供給の確保、長期間にわたり総合的、組織的かつ効率的な研究開発の推進、数十年のエネルギー需要の相当部分を賄いうるクリーンなエネルギーの供給」を目標として、太陽、地熱、石炭、水素等のエネルギーを重点分野にその技術開発を強力に推進することとした<sup>2)</sup>。

この計画を効率的に推進するために基礎的研究と実用化研究・実証化研究の有機的結合が重要であるとの観点から、基礎的研究分野においては国立研究所や大学の活力が、実用化・実証化研究分野では民間企業の活力が十分に駆使できるように両者相俟った総合的技術開発体制が構築されている。

サンシャイン計画の中でも石炭エネルギー技術開発は1973年のエネルギー危機以来、石油の高価格時代に対応する技術として注目され、特に石炭液化技術は液化油が直接石油代替品となること、また石油ショック後ということもありエネルギー技術開発の中でも特に期待され推進されたところである。

## 2. 石炭液化技術の発展の推移<sup>3)</sup>

石炭液化は実は古くから実施されてきた技術開発である。例として、ドイツ、米国、日本における石炭液化技術の発展の推移を図1<sup>4)</sup>に示した。その歴史は1913年にベルギウス



が高温(400～450℃)下、高圧水素(20 MPa)を使った石炭液化に関する特許を取得し、IG 染料会社で工業化の研究(旧 IG 法)が行われたのが始まりといわれている。旧 IG 法は主として軽質油の製造を目的とし、反応温度は 470℃、水素圧力は 22～70MPa と反応条件はかなり厳しいものであった。

米国でも、C.C.C(Carbide and Carbon Chemicals Co.)が 1935 年～1961 年にわたって化学工業用原料を指向した石炭液化の基礎研究およびパイロットプラント研究(300t/d)を実施し、さらにほぼ同じ時期に鉦山局が IG 法の基礎研究とパイロットプラント研究(50t/d)を行っている。その他英国などにおいても 1927 年頃から ICI(Imperial Chemical Industry)が瀝青炭を原料に 100t/d 規模の揮発油製造実験を実施している。

日本においても石油不足に対処するため石炭液化技術の開発が行われ、当時の海軍燃料工場の IG の実験に参加するとともに、満鉄との共同研究を行い撫順液化工場にて 1939 年～1943 年に石炭液化の運転を実施している。当時の燃研でも、1926 年頃から燃料製造を目的に石炭の水素添加研究を実施し、オートクレーブ実験を経た後 1934 年から 5t/d のプラントによる運転研究を行っている。また朝鮮人造石油阿吾地工場では、100t/d 規模の内熱式反応筒による液化実験が 1938～1943 年に行われている。

1927 年～1950 年代のこれら技術開発は、戦前・戦中の石油代替品の製造、主として航空機等の輸送用燃料や化学工業原料を調達することが喫緊の課題で実施されており、経済性等はあまり考慮されていなかった。この時代の石炭液化はいわゆる第一世代の技術開発ということができる。

1960 年代になり、米国は中東の石油事情の緊迫を予測して石炭鉦区の開発を積極的に行うとともに、石炭液化の基礎研究を再開するようになり、ドイツ、英国でも同様の研究開発が進められた。この時代の石炭液化技術開発は既に確立した石油精製技術に基づいたプロセスの最適化・大型化を指向していること、反応温度 450～470℃、反応圧力 15～20MPa の範囲で実施されていること、旧 IG 法に比べて温和な反応条件が採用されていること等が特徴的である。液化油収率は概ね 41～51%前後であり、第一世代の技術と比較して、経済性が考慮されたいわば第二世代の石炭液化技術開発ということができる。この世代の代表的なプロセスとして、米国で開発された SRC-II 法、EDS 法、H-Coal 法、ドイツで開発された新 IG 法があげられる。

日本でも石油危機後の 1974 年にサンシャイン計画が発足し石炭液化技術開発が再び脚光を浴び、豪州褐炭を対象にした日豪国際協力プロジェクトの褐炭液化技術(BCL 法)や瀝青炭液化技術として溶剤抽出液化法(のちに溶剤水添液化法へ展開)、直接水添液化法、ソルボリシス液化法のいわゆる液化三法が開発されたがこれらの技術開発も液化第二世代に分類が可能である。

1990 年代には米国で H-Coal 法の改良技術である CC-ITSL(Cross coupled-Integrated Two Stage Coal Liquefaction)プロセスが開発され、3t/d プラントを用いて運転研究が行われた。日本においても BCL 法を改良した改良型褐炭液化技術(Advanced-BCL 法)や瀝青炭

液化技術の液化三法を統合した NEDOL 法が開発されている。

これらの技術は第一世代、第二世代の液化技術と比較して、反応条件がより温和であること、液化油収率がより高いこと、水素の利用効率がより高いこと等従来型の液化技術レベルを凌駕した特徴を有しており、いわば第三世代の石炭液化技術といえることができる。

表 1 に石炭液化技術の世代間比較をまとめた。

| 1 <sup>st</sup> Generation<br>(1920's-1950's) | 2 <sup>nd</sup> Generation<br>(1980's)                           | 3 <sup>rd</sup> Generation<br>(1990's)         |
|-----------------------------------------------|------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------|
| Old IG                                        | EDS(250t/d)<br>H-Coal(200t/d)<br>SRC-Ⅱ (30t/d)<br>New IG(200t/d) | CC-ITSL(3t/d)<br>A-BCL(50t/d)<br>NEDOL(150t/d) |
| 22MPa – 70MPa (H <sub>2</sub> )<br>470℃       | 15MPa – 20MPa (H <sub>2</sub> )<br>450 - 470℃                    | 15MPa – 17MPa (H <sub>2</sub> )<br>450℃        |
| 4 million t/y<br>(gasoline)                   | Yield<br>(41 – 51%)                                              | Yield<br>(50%<)                                |

表 1 石炭液化技術の世代間比較 <sup>3)</sup>

### 3. 石炭液化技術のキーとなった主要なポイント

液化原料となる石炭は石炭化度(炭素含有量)の違いにより褐炭から瀝青炭まで幅広く、石炭の種類によりその性状および反応性が著しく異なっている。一般的に、褐炭は構造単位が 1 ～ 2 環の芳香族で酸素を多量に含有し比較的液化反応速度が早いことから、例えば 2 段液化プロセスにより反応を制御しつつ液収率の向上を図る方法が効果的である。一方瀝青炭は褐炭に比べより大きい多環の芳香族成分から構成されていることもあり、1 段階の液化プロセスで低分子化・軽質化が困難な成分はむしろ残渣として分離し、残渣はガス化等の反応により水素を回収して利用の方が効果的である <sup>4)</sup>。

サンシャイン計画石炭液化技術開発では当時の国立研究機関(公害資源研究所(公資研)、北海道工業開発試験所(北開試)、九州工業開発試験所(九工試)、化学技術研究所(化技研))および国立大学(北大、東大、九大等)による基礎的研究に加えて、NEDO から民間企業への委託によるプラント開発研究が実施されている <sup>2)</sup>。

公資研(資環研)では古く燃料研究所(燃研)時代に石炭の水素添加反応の研究 <sup>5)</sup>、また資源技術試験所(資技試)時代に「溶剤処理による膨潤炭の製造技術開発」<sup>6)</sup>、公資研時代に「石炭抽出物の化学的構造研究」<sup>7)</sup>等々が実施されたこともあり、石炭の水素添加および溶剤処理技術の高いポテンシャルを背景に溶剤抽出液化技術開発の一翼を担うこと

となった。

液化三法が NEDOL 法へ統合した 1984 年以降は「石炭の液化反応と生成物の改質利用の研究」をテーマに掲げ、石炭液化反応に関する基礎研究、液化生成物の改質研究、エンジンテストなどによる液化油の評価研究等を実施している<sup>8)</sup>。

### 3.1 石炭液化とは

石炭液化とは簡略化すれば図 2 に示すように水素と炭素の原子比 (H/C) が低い石炭から H/C の高い石油製品に転換する技術である。石炭の直接液化では一般的に高温高压下で水素を添加することにより固体の石炭を石油製品並みに流体化させることが可能となる。

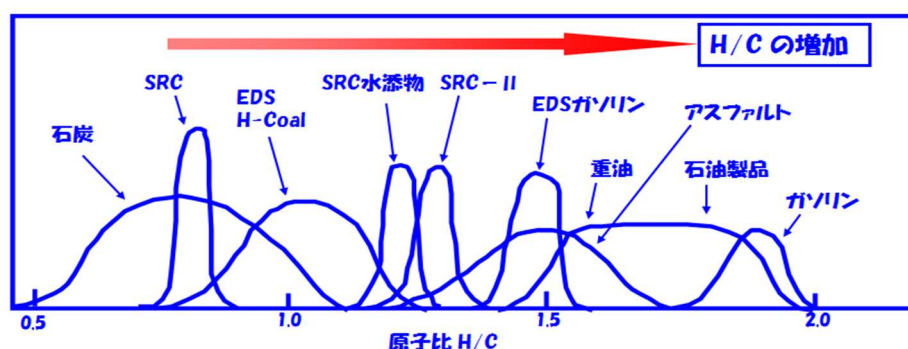


図 2 石炭、石炭液化油、石油の水素/炭素原子比 (H/C)<sup>9)</sup>

具体的には図 3 に示されているように、反応温度の 450℃ 近辺まで加熱することにより熱的に切れやすい石炭中の架橋部分を切断し、生成した不安定な熱分解フラグメントを高圧

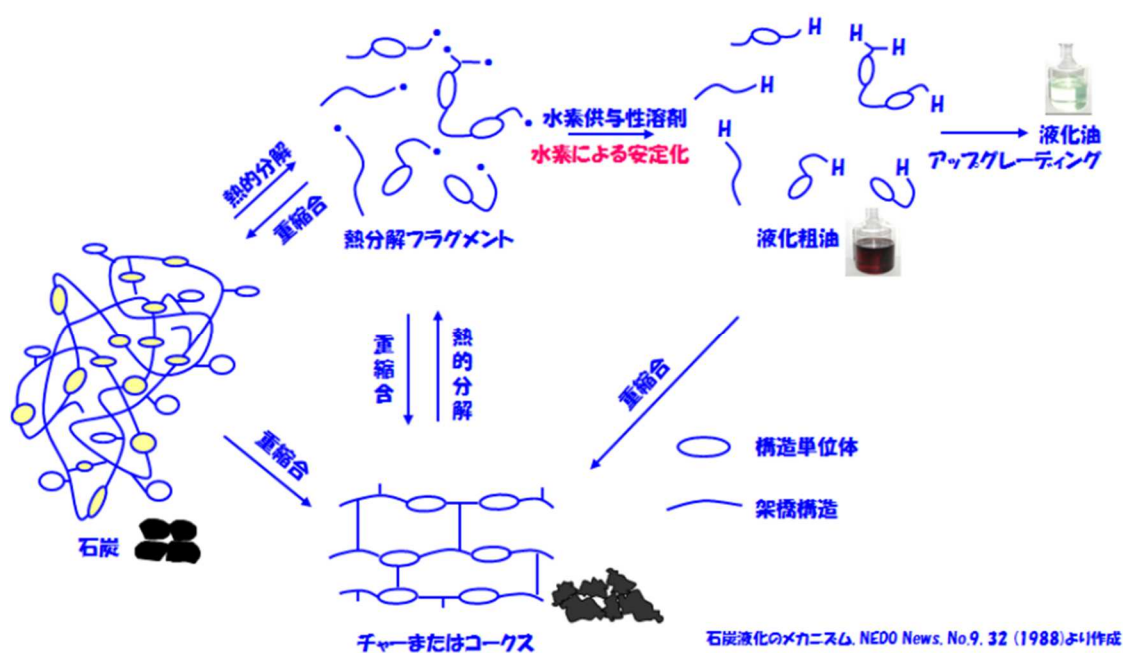


図 3 石炭液化の原理<sup>9)</sup>

水素や溶剤からの水素により安定化させて、最終的に低分子量成分である軽質分(液化油)を得る方法である。供給される水素が十分でないと重縮合反応等によりいわゆるチャーまたはコークスのような高分子固形物が生成する。

石炭の熱分解・水素化を効率的・合理的・連続的に行わせるには、図4に示すように①粉砕された石炭が循環溶剤と混合されスラリー化される工程、②ポンプにて加圧、水素とともに予熱器を経て反応器へ、③所定の水素圧力、反応温度の制御、④反応後気液分離を経て蒸留工程で製品へ、⑤未反応炭を含む残渣はガス化による水素の回収あるいは燃焼に

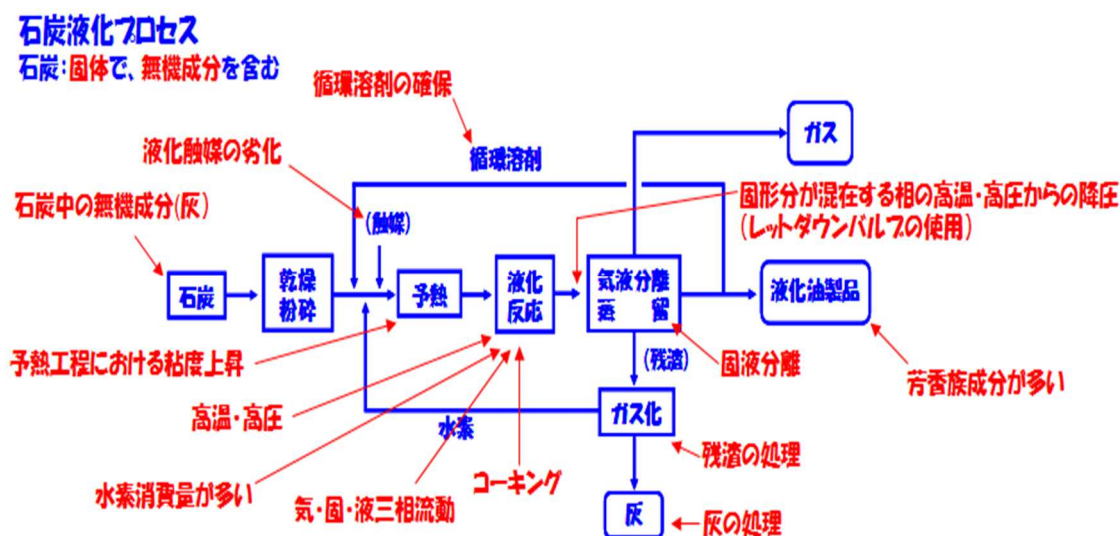


図4 石炭液化における要素技術の開発課題<sup>10)</sup>

よる熱の回収、といった各要素を連続させた一連のプロセス化が必須である。石炭は無機成分を含み固体であることからその取扱いは既存の石油精製プロセスとは大いに異なり、克服すべき開発課題も多く存在する。

実験室レベルで石炭の液化がどんなものであるかを示す好例として、当所の研究内容が1995年9月3日日本テレビ系番組「所さんの目がテン（走れSL！石炭大実験）」内の「石炭で石油をつくろう！」で放映されている。事前取材を受け、石炭・溶剤・触媒をオートクレーブに入れ、水素加圧下で反応後、生成物を濾過分離し、濾液から蒸留操作により溶剤と生成した液化油を回収する石炭液化実験の一部始終、液化油を使用したシャーシダイナモ装置によるエンジンテスト、またサイコロ型に調製した石炭と木炭の密度の比較、燃焼、石炭燃焼時の排ガス分析や硫酸化物の分析等々、石炭に関連するものを朝の10時頃から夕刻6時頃までいろいろ対応させられた。期待して放送当日を迎えたが、取材に束縛された時間に比べ、放送時間30分のうち当所関連は3分、石炭と木炭の違い、石炭液化、エンジンテスト関連等が放映されただけで大いに拍子抜けしたものである。しかしよ



く観ると石炭液化の勘所は押さえられていて、さすがプロの編集と感心した次第でもある。なおこの番組に関しては「目がテン」ライブラリー<sup>11)</sup>で、今でもチェックが可能であることを付け加えておきたい。

### 3.2 公資研(資環研)における石炭液化研究

溶剤抽出液化プロセス<sup>2)</sup>の開発は産学官連携の下、基礎的研究を東京大学、公資研が担当し、プロセスおよびプラント開発は住友金属工業(当時)、住友石炭鉱業(当時)、住友金属鉱山、千代田化工の4社が参画して、溶剤抽出液化プラントの装置化技術および運転技術に関するエンジニアリングデータを取得することを目的に茨城県波崎町(当時)に1t/d PDU (Process Development Unit)を建設し運転研究が行われた。

前述のように、石炭液化は高温下の熱分解による軽質化(水素による安定化)と重縮合化の競争反応で、その反応制御は極めて重要であり、溶剤抽出液化においては石炭と溶剤の相性、溶剤による石炭分子の可溶化・高分散化、溶剤からの水素供与による熱分解生成物の安定化等が技術開発の重要なキーポイントである。

公資研(資環研)ではこれらの課題を解決するためにオートクレーブおよび小型流通式装置による反応条件の最適化や液化特性を検討し、更に1t/d溶剤抽出液化プラントの運転研究から得られた液化油の水素化処理を行い液化粗油の改質反応挙動、生成油の性状分析、エンジンテストによる燃料評価等を実施し石油代替燃料としての適合性を検討している<sup>8)</sup>。

それぞれ得られた成果は技術検討会等に持ち寄り、プラント運転における問題点、溶剤抽出液化のキーである循環溶剤の性能と溶剂量確保、液化生成物の性状と得率分布、液化残渣の性状等々、プラント運転研究成果と基礎的研究成果を交え活発な意見交換、情報交換等を行ったが、この産学官連携体制は溶剤抽出液化技術開発プロジェクトを進展させるにあたり大いに有効であったと思う。

#### 3.2.1 石炭の溶剤抽出液化

溶剤抽出液化のキーとなる炭種による液化特性を検討するとともに、得られた溶剤抽出炭の水素化処理反応(二次水添)の研究、液化油の改質処理に関する研究が実施されている。

オートクレーブを用いて、太平洋炭の液化反応からの生成油の分析<sup>12)</sup>、生成油に及ぼす反応時間および溶剤リサイクルの影響<sup>13)</sup>、さらに各種石炭の水添抽出と抽出炭の性状<sup>14)</sup>を検討し、30種に及ぶ国内炭、外国炭の溶剤抽出液化で得られた抽出炭の構造特性や抽出率、抽出特性の炭種依存性、水素供与性溶剤の効果等を明確化することができ、溶剤抽出液化技術開発プロジェクトにおける炭種の選定指針に対して大きな貢献をした。

溶剤抽出炭の水素化処理(二次水添)に関しては、溶剤抽出炭<sup>15)</sup>あるいは溶剤抽出溶液<sup>16)</sup>の水素化処理、使用済み触媒の性状分析を行い無機成分の触媒表面あるいは内部への分布、および炭素質析出挙動を明らかにしている<sup>17)</sup>。また三池炭抽出溶液<sup>18)</sup>や太平洋炭抽出溶液<sup>19)</sup>、<sup>20)</sup>の小型固定床連続装置(100ml/hr)による水素化処理の連続運転研究も行われ、オート

クレーブ実験結果と比較検討するとともに、連続運転時における問題点等を明らかにし、溶剤抽出炭の二次水添における連続化の基礎資料および運転指針を提供している。

一方で、研究の進捗につれて超重質の溶剤抽出炭を水素化処理するだけでは低分子化・軽質化させることに限界があることも明らかになった。その結果、液化油収率を向上させる方策として当初採用されていた「溶剤抽出炭の水素化処理(二次水添)」研究から「液化油溶剤成分の水素化」研究に重点が移り、プラント運転研究も発足当初の「溶剤抽出液化」から「溶剤水添液化(水素化溶剤を使用した液化)」へその軸足を変更することとなった。当所でもそれに伴い褐炭液化溶剤成分<sup>21)</sup>や瀝青炭液化溶剤<sup>22)</sup>の水素化処理(溶剤の水素化処理)が検討されるようになった。

溶剤の水素供与性が液化反応性と溶剤バランスに与える影響を検討し、炭種によっては溶剤が生成物に取り込まれ溶剤バランスが崩れることを明らかにした。その対応策としては、液化油重質留分を水素化後に液化工程へリサイクルすることにより液化反応性と溶剤バランスを効果的に改善できることを明らかにしている<sup>23)</sup>。さらに重質溶剤循環(ボトムリサイクル)液化における溶剤の性状変化も検討<sup>24)</sup>し、水素供与性溶剤存在下の液化に関して水素化重質留分のリサイクル(ボトムリサイクル)が非常に有効であること等を示した。このボトムリサイクルは NEDOL プロセスの水素供与性溶剤存在下での液化や褐炭液化プロセスで重質生成物を改質する工程に効果的に反映されている。

### 3.2.2 小型流通式石炭抽出液化装置の連続運転研究

オートクレーブによる基礎研究に加えて、連続化の基礎データ取得を目的に小型石炭抽出液化装置(70kg/日)を新設し連続運転研究が実施されている。この装置(管型反応器)は内径 25mm×長さ 2,800 mm、内容積約 1.2L であったが、その規模はラボレベルの研究はお手のものの博士研究員達を戸惑わせるには十分に大きなシロモノであった。

石炭と溶剤の混合溶液(石炭スラリー)を調製するための石炭油中粉碎装置(ボールミル)は、1980 年 NEDO 発足時に初代石炭技術開発室長として赴任した坂部氏<sup>25)</sup>らが 1960 年代に 60kg/日規模の連続装置で石炭高压液相水素化分解の研究を実施していた当時のものであり、幸か不幸か(?) まだ使用可能であった。0.75、1、1.5 インチの鉄球を有する径 60cm、長さ 60cm、回転数 42rpm の回分式ボールミルで 1 回に約 40kg の石炭スラリーが調製できる大層なものである。徹夜運転は装置稼働が順調であれば、何もすることはなく我慢できるものの、運転の下準備としてこのボールミルを使用して石炭スラリーを調製する作業が、実は一番難儀でなかなかのものであった。

どうやらうまく稼働するようになった連続装置を用いて石炭抽出液化実験が行われ、反応塔内の温度分布や生成ガス組成、生成物性状、回収溶剤の性状および沸点分布、液化残渣の性状等を明らかにすることができ<sup>26)</sup>、液化速度に関する考察<sup>27)</sup>を行うことができた。

さらに種々の炭種と溶剤を組み合わせた連続装置の運転研究の結果、瀝青炭の液化では水素供与性溶剤を使用した液化反応においても溶剤の沸点分布の適性化が重要であり、い

わゆる反応管内でのドライアップが起こりやすいこと、石炭スラリー流速や石炭濃度を適切に選択することが非常に重要であること、溶剤として使用した吸収油よりも沸点の高い重質なアントラセン油を混入させた方が運転を安定化できること等を明らかにした。

反応性の高い褐炭の場合には安定した運転を維持するために吸収油とアントラセン油の混合溶剤よりも重質なアントラセン油のみを溶剤とすることが必要である等を明らかにした。

以上、炭種の違いによる液化挙動や運転性について、オートクレーブの結果と連続装置の結果を取得できたことにより、技術検討会等を通じて溶剤水添液化の連続化、プロセス化への橋渡しに資する基礎資料を提供することができた。

### 3.2.3 液化油の改質反応の研究

石炭液化油は石油系油に比べてヘテロ化合物特に窒素化合物を多く含有し、また芳香族化合物の割合が高いことが特徴的であり、石炭液化油を石油製品並みの品質にするために液化油の改質反応を検討した。

1t/d プラントから得られた液化油中質留分を用いて工業用触媒による水素化处理<sup>28),29)</sup>、水素化处理に及ぼす硫黄の効果<sup>30)</sup>、水素化处理油の軽油<sup>31)</sup>あるいは灯油<sup>32)</sup>としての評価、石油系軽油留分との混合水素化处理<sup>33)</sup>、相溶性<sup>34)</sup>等々精力的に検討し、水素化精製(アップグレーディング)により液化油を石油製品並みに改質し利用することが可能であることを明らかにした。

さらに窒素化合物が多い液化油の劣化と安定化に関して含窒素モデル化合物<sup>35)</sup>や液化油軽油留分<sup>36)</sup>の着色についても検討され、主として酸化により着色が進行することを明らかにしている。

これらの成果は、平成6年度から平成13年度まで新燃料油技術開発研究組合(当時)等により実施された液化基盤技術の開発(アップグレーディング等技術)プロジェクトの40バレル/日プラント運転研究における触媒や反応条件の選定の参考資料として提供され、当該プロジェクトの遂行に大いに貢献したところである。

また液化油の酸・塩基処理による脱塩基油、脱酸油、中性油を調製し、それぞれ水素化处理を検討した結果、ヘテロ化合物の除去により水素消費量が減少すること、触媒の活性低下は特に起こらないこと等、脱ヘテロ効果の有効性が示されている<sup>37)</sup>。さらにヘテロ化合物の利用拡大を図るため、メタノール-水系溶剤を利用したヘテロ化合物の分離も検討し、液化油から含窒素化合物<sup>38)</sup>、含酸素化合物<sup>39)</sup>が効果的に分離回収されることも明らかにした。

### 3.2.4 生成物の利用の研究

生成物の利用の研究では、液化油の輸送用燃料としての適合性評価および残渣の有効利用に関する検討を行った。

輸送用燃料評価は実用的な観点から液化油と石油系油との混合燃料について自動車用燃料としての適合性評価を行った。1t/d プラントで得られたワンドアン炭液化油中質留分をさらに水素化精製した油と市販軽油の混合油について検討した結果、セタン価は若干低下するものの試験用ディーゼルエンジンでの機関運転に伴うトラブルは特にないこと、排出ガス中に粒子状物質の増加傾向があるものの液化油の水素化精製をさらに深化させれば解決が可能であることなどを明らかにした<sup>40)</sup>。その他 1t/d プラントから得られたイリノイ炭<sup>41)</sup>、バトルリバー炭<sup>42)</sup>の液化油中質留分についても同様の検討を実施している。

ガソリン燃料としての適合性に関しても検討しており、水素化処理した液化油ナフサ成分を 25%含む石油系混合燃料について検討した結果は 10 モード規制を問題なくクリアできることを示している<sup>43)</sup>。

実車テストは資環研、サンシャイン計画推進本部、NEDO の液化関係者が集まって、つくばセンターから北方約 20km の産総研北サイトの 1 周 3.2km の周回路を使用して行われた。調製した混合軽油および混合ガソリンを使用してディーゼル車、ガソリン車それぞれの走行テストを実施したが、アイドリング時の安定性、騒音、加速性能、走行安定性、排ガス分析等いずれも特に問題はなく、液化油が輸送用燃料として十分適合することを明らかにしている。

石炭液化プロセスにおいては通常 10～30%の液化残渣が副生されておりガス化や燃焼以外の有効利用の可能性を検討するために、液化残渣のキャラクタリゼーション<sup>44)</sup>、熱分解と生成タールの性状<sup>45)</sup>、炭素化<sup>46)</sup>が研究された。残渣の熱分解によりガスが 3～12%、タールが 17～51%回収できること、液化油蒸留残渣のアスファルテン(ヘキサン不溶—トルエン可溶分)から生成した炭素化生成物はその黒鉛化性も良好で一般の石油コークスと比べ遜色がないこと等を示し、液化残渣をガス化、燃焼以外に有効利用できる可能性を明らかにした。

#### 4. その後の推移

石炭液化プロジェクト終了後、成果は技術パッケージとしてまとめられ日本の石炭液化技術のレベルは商業化レディの状況となったが、当時の原油価格はそれほど極端に高騰せず、残念ながら日本発の石炭液化商業化プラントは日の目を見ることはなかった。

現在石炭直接液化に関して世界で唯一稼働中のものは中国内モンゴル自治区オルドスに建設された 6,000t/d 規模の石炭液化商業プラントであるが、これは日本の液化技術が別の形で花開いたものといえよう。

1981 年に日中間で「石炭液化技術共同開発に関する協議書」を締結した後、日本側の協力で 1983 年に北京煤化学研究所(当時)に 0.1t/d ベンチプラント(BSU)を設置し 1983 年～2000 年 3 月までの間、中国炭 27 炭種を使用して 57 回の液化実験を行い、2000 年 3 月「石炭液化技術共同開発」プロジェクト終了後も中国炭液化 FS 等の日中技術協力プログラム等を通じて日本側が多大な貢献をした結果の賜物である。

石炭液化プロジェクト終了後、資環研では1997-1998年度に「ブラジル産マリム原油の水素化分解技術に関する研究」(工技院(当時)のITIT事業(国際産業技術研究事業))、1999-2001年度に「重質炭化水素資源の分解技術に関する研究」(NEDO国際研究協力事業)を推進した。この事業はリオデジャネイロ沖合の海底油田に多量に賦存するマリム原油を水素化分解して軽質油を製造する技術に関する国際共同研究である。非常に重質なため石油公社(当時)のペトロブラスはマリム原油蒸留残渣の分解技術を探索していた。当所でのマリム原油アスファルテンの分析・構造解析の結果は、非常に重質で多環芳香族構造に富み石炭類似構造を想起させてはいたが、石炭液化(固体である石炭の水素化分解)の困難さに比べたら何ということもないと考えたことがプロジェクト提案のきっかけであった。

また1999-2001年度「低エミッション石炭エネルギー利用システム」(工技院ニューサンシャイン計画先導研究)、2002-2007年度「ハイパーコール利用高効率燃焼技術の開発」(NEDO石炭利用次世代技術開発調査)の研究開発も推進したが、このプロジェクトは当所の溶剤抽出技術および抽出物の固液分離技術、石炭の凝集構造緩和技術を応用した石炭から無灰炭(ハイパーコール)を製造する技術が中核であり、製造した無灰炭のガスタービン利用可能性、コークス製造用粘結材としての利用を目的にプロジェクトが推進されている。なかでもコークス製造用粘結材としての利用は、さらに2008-2012年度「環境調和型製鉄プロセス技術開発(COURSE50)」(NEDO環境安心イノベーションプログラム・エネルギーイノベーションプログラム)のサブテーマ「高強度・高反応性コークス製造技術の開発」として実施されているところである。

かつて当所で実施した石炭液化研究の波及効果として挙げることができるこれらのプロジェクト展開を見るにつけ、当時の石炭液化研究で培われた技術・研究ポテンシャルが効果的に今日まで脈々と引き継がれていることを実感するものである。

## 5. まとめ

公資研(資環研)はサンシャイン計画がスタートした当初から溶剤抽出液化技術の基礎研究を担当し、オートクレーブを用いた実験では炭種と抽出液化特性、抽出溶剤の選定、水素供与性溶剤の最適化、より重質な溶剤成分の適用可能性、抽出液化における触媒の効果、高効率触媒の選定等々を明らかにし、溶剤抽出液化技術開発における炭種選定に関する有力な知見を提供した。

また流通式石炭抽出液化装置を用いて種々の炭種と溶剤を組み合わせた連続装置の運転研究を実施し、水素供与性溶剤を使用した液化反応においても溶剤の沸点分布の適性化が重要であること、石炭スラリー流速や石炭濃度を適切に選択することが重要であること等、1t/d溶剤抽出液化プラントの運転研究のための基礎資料を提供した。

さらに1t/dプラントから得られた液化油を水素化処理し石油製品並みに改質することが可能であること、改質油の試験用エンジンテストや実車テストの結果、輸送用燃料としての適合性が十分にあることを示したが、これらの成果は液化基盤技術の開発(アップグ

レーディング等技術) プロジェクトの参考資料として利用され、プロジェクト遂行に大いに貢献している。

溶剤抽出液化プロセスの開発は東京大学、公資研、住友金属工業(当時)、住友石炭鉱業(当時)、住友金属鉱山、千代田化工等、産学官連携の下で推進され、技術検討会等での活発な意見交換、情報交換等を通じて溶剤抽出液化に係わる多くの問題点を解決してきた。これまで並行的、競争的に推進されていた液化三法が 1984 年に NEDOL 法に統合された際には溶剤抽出液化グループから派生した「溶剤水添技術」が中核技術の一つとして採用され、NEDOL 法の発展に大いに貢献しているところである。

なお当所の石炭液化プロジェクト及びそこから派生した関連研究の学術的成果は、以下に示すような受賞となって結実している。

昭和 61 年度石油学会論文賞

石炭液化油中質油留分の水素化処理及び生成油の評価 (請川孝治、近藤輝男、松村明光、小口勝也、中村悦郎)

昭和 61 年度燃料協会進歩賞(学術部門)

各種石炭の液化特性ならびに液化油の改質反応挙動に関する研究 (佐藤芳樹)

平成 4 年度石油学会奨励賞

化石燃料の利用に関する研究 (稲葉敦)

平成 5 年度日本エネルギー学会進歩賞(学術部門)

石炭利用技術と地球環境に関する研究 (稲葉敦)

平成 8 年度日本エネルギー学会公募講演賞

選択的分解反応を利用した低温・低圧石炭液化技術開発 (斎藤郁夫)

平成 8 年度石油学会論文賞

芳香族系重質油の水素移動による接触分解、熱分解の制御と反応分析 (佐藤芳樹)

平成 16 年度日本エネルギー学会学会賞(学術部門)

ライフサイクルアセスメント (L C A) に関する研究 (稲葉敦)

平成 19 年度日本エネルギー学会学会賞(学術部門)

石炭利用技術の新展開に関わる基礎的・基盤的研究 (斎藤郁夫)

平成 27 年度日本エネルギー学会学会賞(学術部門)

低品位石炭、超重質油及び木質バイオマス等からの超クリーン燃料製造に関する研究 (坂西欣也)

以上、公資研(資環研)で行われた石炭液化研究について、「石炭液化技術開発プロジェクトに貢献したものとは？」という視点でまとめてみた。その思いを十分にお伝えできたのかどうかはなはだ心もとないところではあるが関係各位のご意見、ご叱正をいただければ幸甚です。

## 6. 謝辞

公資研(資環研)が係わったサンシャイン計画の石炭液化は、東京大学、住友金属工業(当時)、住友石炭鉱業(当時)、住友金属鉱山、千代田化工等とともに石炭溶剤抽出液化グループとして産学官連携で共同推進されたところである。グループ関係各位に感謝の意を表します。

また公資研(資環研)の石炭液化技術開発研究がうまく機能し完了できたのは、プロジェクト研究に従事された関係各位のおかげです。参考文献に示されている論文著者の方々に深甚なる感謝の意を表したいと思います。

## 7. 参考文献・資料

- 1) JCOAL コールデータバンク、[http://www.jcoal.or.jp/coaldb/country/05/post\\_7.html](http://www.jcoal.or.jp/coaldb/country/05/post_7.html)
- 2) サンシャイン計画 10 年の歩み、サンシャイン 10 周年記念事業推進懇話会(1984. 9)、3) 斎藤郁夫、資源と環境, **5**, No6, 369(1996)、4) 瀝青炭液化関係資料(第 16 回合同審議関連)工業技術院サンシャイン計画推進本部(1988. 3) 等をもとに加筆作成、5) 黒川ら、工業化学雑誌, **45** 1030, 1033(1942)、6) 馬場ら、燃協誌, **28** 225(1949), **31** 222(1952)、7) 大内ら、燃協誌, **47** 495(1965)、8) ピアレビュー実施報告書—石炭液化分野—、資源環境技術総合研究所(1997. 3)、9) NEDO NEWS, No. 9, 32(1988)を加筆、10) JCOAL 石炭基礎講座「石炭液化」資料 [http://www.jcoal.or.jp/coaldb/shiryo/material/2012\\_11\\_saito.pdf](http://www.jcoal.or.jp/coaldb/shiryo/material/2012_11_saito.pdf) より
- 11) 「目がテン」ライブラリー <http://www.ntv.co.jp/megaten/library/>、12) 佐藤ら、石油学会誌, **27** 413(1984)、13) 佐藤ら、石油学会誌, **28** 19(1985)、14) 伊牟田ら、燃協誌, **58** 754(1979)、15) 斎藤ら、燃協誌, **59** 981(1980)、16) 斎藤ら、燃協誌, **63** 768(1984)
- 17) 斎藤ら、燃協誌, **63** 1024(1984)、18) 稲葉ら、燃協誌, **63** 141(1984)、19) 稲葉ら、燃協誌, **64** 36(1984)、20) 三木ら、燃協誌, **66** 149(1987)、21) 三木ら、燃協誌, **66** 1002(1987)、22) 稲葉ら、燃協誌, **70** 921(1991)、23) Y. Sato et. al., Energy & Fuels, **5** 98(1991)、24) 三木ら、燃協誌, **69** 440(1990)、25) 坂部ら、資技試報告第 61 号(1965. 3)
- 26) 稲葉ら、燃協誌, **63** 781(1984)、27) 稲葉ら、燃協誌, **63** 877(1984)、28) 近藤ら、石油学会誌, **27** 70(1984)、29) 請川ら、石油学会誌, **27** 242(1984)、30) 近藤ら、石油学会誌, **27** 551(1984)、31) 近藤ら、石油学会誌, **27** 247(1984)、32) 近藤ら、石油学会誌, **27** 362(1984)、33) 請川ら、石油学会誌, **27** 440(1984)、34) 請川ら、石油学会誌, **27** 456(1984)
- 35) 請川ら、燃協誌, **64** 997(1985)、36) 山本ら、燃協誌, **65** 19(1986)、37) 加茂ら、燃協誌, **69** 38(1990)、38) Y. Kodera et. al., Fuel, **70** 765(1991)、39) Y. Kodera et. al., Fuel, **72** 57(1993)、40) 大井ら、燃協誌, **65** 212(1986)、41) 大井ら、燃協誌, **68** 899(1986)、42) 大井ら、燃協誌, **69** 1077(1990)、43) 大井ら、燃協誌, **66** 273(1987)、44) 丸山ら、燃協誌, **66** 835(1987)、45) 古田ら、燃協誌, **67** 783(1988)、46) 古田ら、燃協誌, **69** 870(1990)

## 8. 著者略歴

斎藤郁夫（さいとう　いくお）

|                   |                               |
|-------------------|-------------------------------|
| 1976. 4           | 通商産業省工業技術院公害資源研究所入所           |
| 1981. 10～1983. 9  | 米国ユタ大学燃料工学科博士研究員              |
| 1984. 4～1985. 3   | 通商産業省工業技術院サンシャイン計画推進本部併任      |
| 1987. 10～1989. 12 | 新エネルギー総合開発機構石炭技術開発室主任研究員      |
| 1990. 1～          | 工業技術院資源環境技術総合研究所(資環研)燃料物性研究室長 |
| 1998. 4～          | 資環研新燃料開発研究室長                  |
| 2000. 4～2001. 3   | 群馬大学工学部客員教授                   |
| 2001. 4～          | 産総研エネルギー利用研究部門新燃料開発研究グループ長    |
| 2007. 4～          | 産総研エネルギー技術研究部門主幹研究員           |
| 2008. 4～          | 産総研国際部門シニアスタッフ                |
| 2009. 4～2012. 3   | 群馬大学工学部非常勤講師                  |
| 2011. 4～2013. 3   | 東京農工大学工学部非常勤講師                |
| 2012. 4～          | 産総研エネルギー技術研究部門テクニカルスタッフ       |
| 2014. 4～2015. 3   | 三重大学工学部非常勤講師                  |
| 2015. 4～          | 産総研創エネルギー研究部門テクニカルスタッフ        |

|                |
|----------------|
| 受理日：2016年4月11日 |
|----------------|