

氏 名	あし だ りゅう いち 蘆 田 隆 一
学位の種類	博 士 (工 学)
学位記番号	工 博 第 2406 号
学位授与の日付	平 成 16 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 化 学 工 学 専 攻
学位論文題目	高温溶剤抽出を利用した石炭の前処理法の開発

論文調査委員 (主 査) 教 授 三 浦 孝 一 教 授 前 一 廣 教 授 田 門 肇

論 文 内 容 の 要 旨

今後、エネルギー需要の大幅な伸びが予測される中で、資源量の豊富な石炭の地球環境に配慮した高効率利用技術の開発が急務となっている。本論文は、石炭の溶剤流通型の高温溶剤抽出法を提案し、石炭の高効率転換プロセスにおける前処理技術としての提案法の妥当性を様々な観点から検討したもので、結論、本論6章と総括より成っている。

緒論では、石炭の溶剤抽出に関する研究の現況、石炭前処理技術開発の重要性について触れた後、本研究の目的について触れている。

第1章では、溶剤流通型の高温溶剤抽出法を提案し、無極性溶剤であるテトラリン、実溶剤であるカルボール油、クレオソート油を抽出溶剤として提案法を20種類の石炭に適用した。テトラリンを溶剤として抽出を行い、亜瀝青炭や瀝青炭で60%を越える高抽出率が得られることを明らかにしている。さらに、石炭由来の実溶剤であるカルボール油で抽出を行い、褐炭から亜瀝青炭までの幅広い種類の石炭を70%以上も抽出することに成功している。

第2章では、第1章で提案した高温溶剤抽出法の、脱灰・脱硫を目的とした石炭の前処理法としての可能性を検討し、本法により主要無機元素のみならずAsやHgなどの有害な微量金属の含有量の少ない抽出物が得られることを明らかにしている。また、抽出に伴う形態別硫黄の分配挙動を調べ、テトラリン抽出の場合、石炭中の全てのPyrite-SとほとんどのThiophenic-Sが残渣に留まり、全てのAliphatic-SとPhenyl-Sが抽出物に移行することを明らかにしている。これらの結果から、提案法が石炭の高効率な事前脱硫法になり得る可能性を示している。

第3章では、提案溶剤抽出法を利用した新規脱水法を提案している。この方法は、200℃以下という低温で、石炭に無極性溶剤を連続的に流し、石炭中の水を液状のまま溶剤によって除去するというものである。含水率が約50%のオーストラリア産褐炭を、テトラリン溶剤を用いて150℃において脱水し、含水率を2%以下にすることに成功している。さらに、この方法による脱水機構を検討し、石炭-水の間に形成される水素結合が熱エネルギーによって緩和され、水素結合から解法された水が温度の上昇で溶解力の増した無極性溶剤によって溶かし出されることを明らかにしている。

第4章では、溶剤の循環使用が石炭の抽出挙動に及ぼす影響を検討し、溶剤の循環再利用が使用溶剤量の低減のみならず石炭の抽出率の増加にも効果があることを明らかにし、溶剤循環抽出法が経済的にも優れた前処理法として利用できる可能性があることを示している。

第5章では、提案溶剤抽出法を利用した石炭の新規フラクショネーション法を提案し、350℃以下の温度での3段階の抽出操作によって亜瀝青炭を分解することなく5つの分子量の異なるフラクションに分離することに成功し、低い抽出温度で得られたフラクションほど元素比H/C値の大きい成分で構成されていることを明らかにしている。さらに、各フラクションの熱機械分析を行い、各フラクションの溶融性が大きく異なることを明らかにし、150℃以下で得られたフラクションが高機能炭素材料の原料として用いる可能性を示している。

第6章では、提案溶剤抽出法で得られた石炭抽出物の有効利用法の開発に取り組んでいる。その結果、単独ではコークス

の原料にならない劣質な石炭に抽出物を添加して乾留することで、劣質炭のみからコークスが製造できる可能性を示している。また、通常は純物質から合成される高機能炭素材料源であるメソフェーズを一部の抽出物から生成させることにも成功している。

総括では、本研究で得られた成果を整理するとともに、提案した高温溶剤抽出法を核とした新しい石炭転換プロセスの可能性について触れている。

論文審査の結果の要旨

今後、エネルギー需要の大幅な伸びが予測される中で、地球環境に配慮したクリーンで高効率な石炭利用技術の開発が急務となっている。本論文は石炭の溶剤流通型の高温溶剤抽出法からなる新しい石炭の前処理法を提案し、その妥当性を様々な観点から検討したもので、得られた成果は次の通りである。

1. 石炭を350℃程度において流通溶剤で抽出する方法を提案し、その妥当性を無極性溶剤であるテトラリン、実溶剤であるカルボール油、クレオソート油を抽出溶剤として20種類の石炭を抽出することにより検討した。その結果、テトラリンは亜瀝青炭や瀝青炭を60%以上、カルボール油は褐炭から瀝青炭までの幅広い種類の石炭を70%以上も抽出できることを明らかにした。さらに、得られた抽出物は主要無機元素のみならずAsやHgなどの有害な微量金属、さらには硫黄化合物の含有量が非常に少ないことを示した。
2. 提案溶剤抽出法を利用した石炭の新規脱水法を提案した。この方法により、200℃以下の低温で石炭中の水を液状のまま溶剤に溶解することによって除去することに成功し、本法がエネルギー効率に優れた石炭の脱水法として利用できる可能性を示した。
3. 提案溶剤抽出法を利用した、石炭の新規フラクショネーション法を提案し、350℃以下の温度での3段階の抽出操作によって亜瀝青炭を分解することなく分子量の異なる5つのフラクションに分離することに成功した。
4. 提案溶剤抽出法で得られた石炭抽出物の有効利用法の開発に取り組み、抽出物が加熱に伴って軟化・溶融する特性を利用して、鉄鋼用コークス、炭素繊維などの原料として利用できる可能性を示した。

以上要するに、本論文は高温での溶剤抽出を利用した新しい石炭の前処理法を提案し、提案法が石炭からクリーンな燃料・化学原料源を得る有効な方法であることを明らかにしたもので、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成16年2月23日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。