

学位論文の要旨

氏名	藤山 優一郎
学位論文題目	高分解型 FCC 技術の研究 (Development of High-Severity FCC Process for maximizing propylene production)

本論文は流動接触分解を用いた重質油からのライトオレフィン生産に関する研究をまとめたものである。

第1章には本研究の背景と既往の研究についての調査結果をまとめた。流動接触分解プロセスの目的生成物がガソリンからライトオレフィンへシフトしつつあることから、流動接触分解プロセスを用いた重質油からのライトオレフィン生産の最適化を本研究の目的とした。また、既往の研究をまとめ、触媒の進歩に伴って反応器の形式が変化してきた流動接触分解の歴史を述べた。さらに最新の研究の中でダウンフローリアクターが取り上げられている事例を紹介し、本研究でも取り上げることにした。

第2章ではライトオレフィン生産に最適な反応条件の組み合わせについて検討した。分解反応は600℃前後の高反応温度を用いることで容易に限界値に達すること、その上でライトオレフィン収率を最大化するためには水素移行反応などの二次的な反応の抑制が重要であることを見出した。種種の検討の結果、反応条件の組み合わせとして高温、短接触時間、高触媒/油比の条件が好ましいことを見出した。

第3章ではライトオレフィン生産の最大化を目指した触媒開発について述べた。ここでも水素移行反応の抑制に主眼を置き、酸密度が小さいため二分子反応である水素移行反応を大幅に抑制することができるゼオライトの開発などに成功した。

MFI型ゼオライトを用いる添加剤についても検討を行った。

第4章ではライトオレフィン生産プロセスにおけるダウンフローリアクターの適用を検討した。上述の反応条件、すなわち高触媒/油比において短接触時間を達成するために、ダウンフローリアクターが理想的な反応場を提供しうることを示した。

第5章では上述の反応条件、触媒、ダウンフローリアクターの組み合わせからなる開発プロセスに関して、反応生成物収率の予測を可能とする反応シミュレーターの開発について述べた。

ランプモデルと多段混合槽モデルを組み合わせ、ダウンフローリアクターにおけるライトオレフィン生産を再現できるシミュレーターを完成させた。

第6章では本開発プロセスを商業的に用いる上で重要となる点として、原料油種が反応成績に及ぼす影響に関して論じた。石油精製においては上流装置の運転条件、特に常圧蒸留装置に投入される原油の種類によって下流装置の原料油性状が大きく変化する。従って、できるだけ幅広い原料油性状に対処できるプロセスを開発する必要がある。本研究においては減圧軽油、常圧残油など種類の原料油を用いた実験を行い、本研究で開発したプロセスが、残油を含め多種の原料を用いて高いプロピレン収率をもたらすことを明らかにした。

第7章では本研究の成果に関して総括した。

以上

論文審査の要旨

報告番号	理工研 第337号	氏名	藤山 優一郎
審査委員	主査	筒井 俊雄	
	副査	伊地知 和也	甲斐 敬美

学位論文題目 高分解型FCC技術の研究
(Development of High-Severity FCC Process for maximizing propylene production)

審査要旨

提出された学位論文及び論文目録等を基に学位論文審査を実施した。本論文は、流動接触分解を用いた、重質油からのプロピレンなどのライトオレフィン生産に関する研究をまとめたもので、全文7章より構成されている。

第1章では本研究の背景と既往の研究についてまとめた。流動接触分解プロセスの目的生成物がガソリンからライトオレフィンへシフトしつつあることから、流動接触分解プロセスを用いた重質油からのライトオレフィン生産の最適化を本研究の目的とした。

第2章ではライトオレフィン生産に最適な反応条件の組み合わせについて検討した。分解反応は600℃前後の高反応温度を用いることで容易に限界値に達すること、その上でライトオレフィン収率を最大化するためには水素移行反応などの二次的な反応の抑制が重要であることを見出した。種々の検討の結果、反応条件の組み合わせとして高温、短接触時間、高触媒/油比の条件が好ましいことを見出した。

第3章ではライトオレフィン生産の最大化を目指した触媒開発について述べた。ここでも水素移行反応の抑制に主眼を置き、酸密度が小さいため二分子反応である水素移行反応を大幅に抑制することができるゼオライトの開発などに成功した。MFI型ゼオライトを用いる添加剤についても検討を行った。

第4章ではライトオレフィン生産プロセスにおけるダウンフローリアクターの適用を検討した。上述の反応条件、すなわち高い触媒/油比において短接触時間を達成するために、ダウンフローリアクターが理想的な反応場を提供しうることを示した。

第5章では上述の反応条件、触媒、ダウンフローリアクターの組み合わせからなる開発プロセスに関して、反応生成物収率の予測を可能とする反応シミュレーターの開発について述べた。ランプモデルと多段混合槽モデルを組み合わせ、ダウンフローリアクターにおけるライトオレフィン生産を再現できるシミュレーターを完成させた。

第6章では本開発プロセスを商業的に用いる上で重要となる点として、原料油種が反応成績に及ぼす影響に関して論じた。石油精製においては上流装置の運転条件、特に常圧蒸留装置に投入される原油の種類によって下流装置の原料油性状が大きく変化する。従って、できるだけ幅広い原料油性状に対処できるプロセスを開発する必要がある。本研究においては減圧軽油、常圧残油など種類の原料油を用いた実験を行い、本研究で開発したプロセスが、残油を含め多種の原料を用いて高いプロピレン収率をもたらすことを明らかにした。

第7章では本研究の成果に関して総括した。

以上本論文は、重質油からのプロピレンなどのライトオレフィン生産に適した流動接触分解法について触媒反応面、反応工学面、反応装置工学面から総合的に検討したものである。これは、資源・エネルギー分野における新プロセスの開発・設計に大きく寄与する。

よって、審査委員会は博士（工学）の学位論文として合格と判定する。

最終試験結果の要旨

報告番号	理工研 第337号	氏名	藤山 優一郎
審査委員	主査	筒井 俊雄	
	副査	伊地知 和也	甲斐 敬美
平成22年8月6日に行われた論文発表会において、学位論文の内容について1時間の説明を受けた後、30分間の質疑応答がなされ、的確な回答がなされた。主な質疑応答の内容をいかに記す。			
質問1：研究の各段階において、どのような装置を用いて実験を行ったのか？			
回答：触媒評価など基礎検討はMAT (Micro Activity Test) 装置、接触時間などプロセス的な検討は循環流動層パイロット装置を用いて実施した。前者は固定層、後者は流動層なので方式は異なるが、MATを用いて触媒研究を行った後、循環流動層パイロット装置で反応工学・装置工学的検討を行った。			
質問2：MATとパイロット装置の相関は取れるか？			
回答：常に同じ反応条件を用いれば、触媒の序列は同じになる。収率の絶対値には差異がある。			
質問3：ダウンフロー型のパイロット装置における触媒のディストリビューションはどのように行っているのか？			
回答：パイロットの反応器内径は10mm前後であり、特に分散を高める工夫は必要なかった。商業機においては規則充填物の利用を考えている。			
質問4：ダウンナーで中央と壁面で速度が同じになる理由はなにか？			
回答：壁面との摩擦により粒子速度が低下すると粒子の空間密度が増大する。この壁近傍の粒子群は、上昇流であるライザーの場合は重力により減速されて速度分布を拡大しやすいが、ダウンナーの場合は重力で加速されるため、速度分布を減らす方向に作用すると考えられる。			
質問5：LPG中のパラフィンの量はどうなるか？			
回答：HS-FCCの方がオレフィン/パラフィン比が高くなるが、分解率自体も高いため、結果的にLPGパラフィンの絶対量は増える。			
質問6：触媒の擬似平衡化時に脱アルミした箇所の修復など、後処理を行っているか？			
回答：行っていない。実装置での利用状態を模擬することが目的であるため。FCC触媒は安価であるため、現実の装置においてそのような特殊な処理を行うことは考えにくい。			
質問7：水素移行反応はヒドリドの移動によって起こるのか？それを媒介するような物質はあるのか？			
回答：状況証拠からそのように言われているのであって、直接的な証拠は得られていないと思う。媒介する物質については解明されていない。本研究とは逆に水素移行が主反応になるほど加速することは難しいと考えられる。			
その他多くの質疑応答が行われたが、いずれに対しても明瞭かつ適切な回答がなされた。			
以上の結果から、審査委員の全員が、申請者が大学院博士後期課程の修了者として十分な学力と見識を有するものと認め、博士（工学）の学位を与えるに足る資格を有するものと判定した。			