北海道大学工学部研究報告
第 102 号（昭和 56 年）

Bulletin of the Faculty of Engineering,
Hokkaido University, No. 102 (1981)

石炭液化に関する反応工学的研究（第２報）*
── 石炭連続液化装置の組立ならびに運転結果について ──

守富　寛** 　小野重好*** 　千葉忠俊** 　真田雄三**

（昭和 55 年 8 月 30 日受理）

Kinetic Study on Coal Liquefaction Reaction (Part 2)
── Operation of Flow Type Reactor ──

Hiroshi MORITOMI* 　Shigeyoshi ONO**
Tadatoshi CHIBA* 　Yuzo SANADA*

(Received August 30, 1980)

Abstract

For coal liquefaction reaction, there are many drawbacks in the batch reactor to obtain the desired data.

In contrast, the flow type reactor has many advantages to obtain the desirable data. A test model unit of flow micro reactor was built and operated. The test unit (M-II) was rearranged with the reactor tube and vessels of Coal Hydrogenation Micro Reactor Test Unit M-I. The flow diagram of the M-II is depicted in Fig. 2.

Characteristics and flow properties of coal/petroleum light oil and coal/anthracene oil slurries under high pressure were discussed. In order to obtain the steady flow condition, viscosity of vehicle oil is one of the most important factors. Conversion of liquefaction was also discussed.

1. 緒　　言

石炭の液化反応に関して，米国では溶剤精製炭法（Solvent Refined Coal, SRC），水素供与性溶媒抽出法（Exxon Donor Solvent, EDS），および沸騰床直接水添液化法（H-Coal）など工業化プロセスの技術開発段階にまで発展している。これらのプロセスは，米国の特定石炭を対象としている。我ヶ国では米国などと異なり，原料炭の大部分を海外に依存しなければならない。これらの輸入される石炭の反応特性が炭種により異なることから，石炭に見合った独自のプロセスと操作法を開発する必要がある。このためには直接水添液化法（いわゆる Bergius 法[2)3)]）のみならず，長期的見通しに立った転換効率の高い新しい液化法についての反応速度論的な基礎的研究を積み上げることが，きわめて重要である。

昭和 50 年 4 月に新設された石炭系資源実験施設では石炭液化に関する研究を重要課題に選定

* 石炭系資源実験施設年報[5)] 1，47（1975）を第１報とする。
** 工学部付属石炭系資源実験施設
*** 同上　受託研究員，出光興産株式会社中央研究所

し，53年には石炭の抽出，高圧水素化分解反応などの反応を連続的に行なえる流通式の石炭液化マイクロリアクター試験設備（ＭＩ）が本施設に設置された。本装置は，プロセス開発のための装置各部の形状，性能を含む化学工学的，反応工学的知見を得るためのものであり，石炭液化反応特性と石炭構造，液化油の性状との相関々係を明らかにすることを目的としている。本報告は，流通式石炭液化マイクロリアクターを用いた石炭液化反応速度論的研究の一環として，スラリーの安定な流通を得るための装置の改善と運転条件の設定に関するものであり，これに関連する知見を述べたものである。

2．石炭液化反応

ＭＩはベンチスケール規模の装備を縮小し，コンパクトにしたシステムであり，このため配管が複雑過ぎ，ガス漏れや閉塞個所を見つけ出しにくく，液化反応実験を行う以前に改良することになった。改良したマイクロリアクター（ＭII）を用いて，操作および操作条件を確立するため，先ずＭＩと同じ管型流通反応器を用いて，従来の液化条件より温和な条件にて操作できる石油系分解油による石炭の可溶化法[1]の実験，さらに，従来の直接液化法の基礎実験を行った。

Table 1. Analysis date for decrystallized anthracene oil (CAO) and cracking oil (HFG).

	CAO	HFG
gravity	1.119	0.8226
	cut temp.	cut temp.
15%	303	135
10	328	138
30	348	—
50	359	157
97	—	206

石油系分解油による石炭の可溶化とは，従来の直接水添や溶剤抽出液化法などの水素化反応を，石油系分解油に含まれるオレフィンによるアルキル化反応に置き換えることにより，温和な液化反応条件で石炭を液化油やアントラセン油に可溶化させてから水添反応を行おうとするものであり，水添反応の前処理とも考えうる。

これに対し直接液化は，一般的には Bergius 法[2)3)]に代表される高圧水素化分解による液化であるが，ここでは，SRC, EDS, H-Coal 法など，前述のアルキル化反応の条件と比べてより高温高圧の操作になる液化法の総称とする[4)]。本報では，まず反応条件の温和な石油系分解油による石炭の可溶化法についての流通方式の操作法を確立し，次に，より苛酷な反応条件にて水添反応を施す場合のプロセスを想定して行うものである。

使用した石油系分解軽油（HFG）と脱晶アントラセン油の性状を Table 1 に示す。

3．実験装置ならびに反応操作

3．1　実験装置

3．1．1　マイクロリアクターＭＩ　　石炭液化連続反応装置としてのマイクロリアクター（ＭＩ）のフローシートを Fig. 1 に示す。試験設備の詳細は石炭系資源実験施設年報（1975）[5)]に報告されている。

ＭＩは，Fig. 1 にみられるように原料スラリー供給系統と水素ガス供給系統の２系統に大きく分けられるが，それらの両ラインが複雑に入り組んでいる上に，多数の流量調節バルブとライン切り換えバルブが組み込まれていたため，高圧下（～200気圧）での運転に際してガス漏れやスラリー閉塞個所を素早く見つけ出すことが困難であった。また複雑なラインをコンパクトにまとめたため復旧作業に時間と手間を要した。さらに，スラリー供給系統の原料供給用プランジャーポ

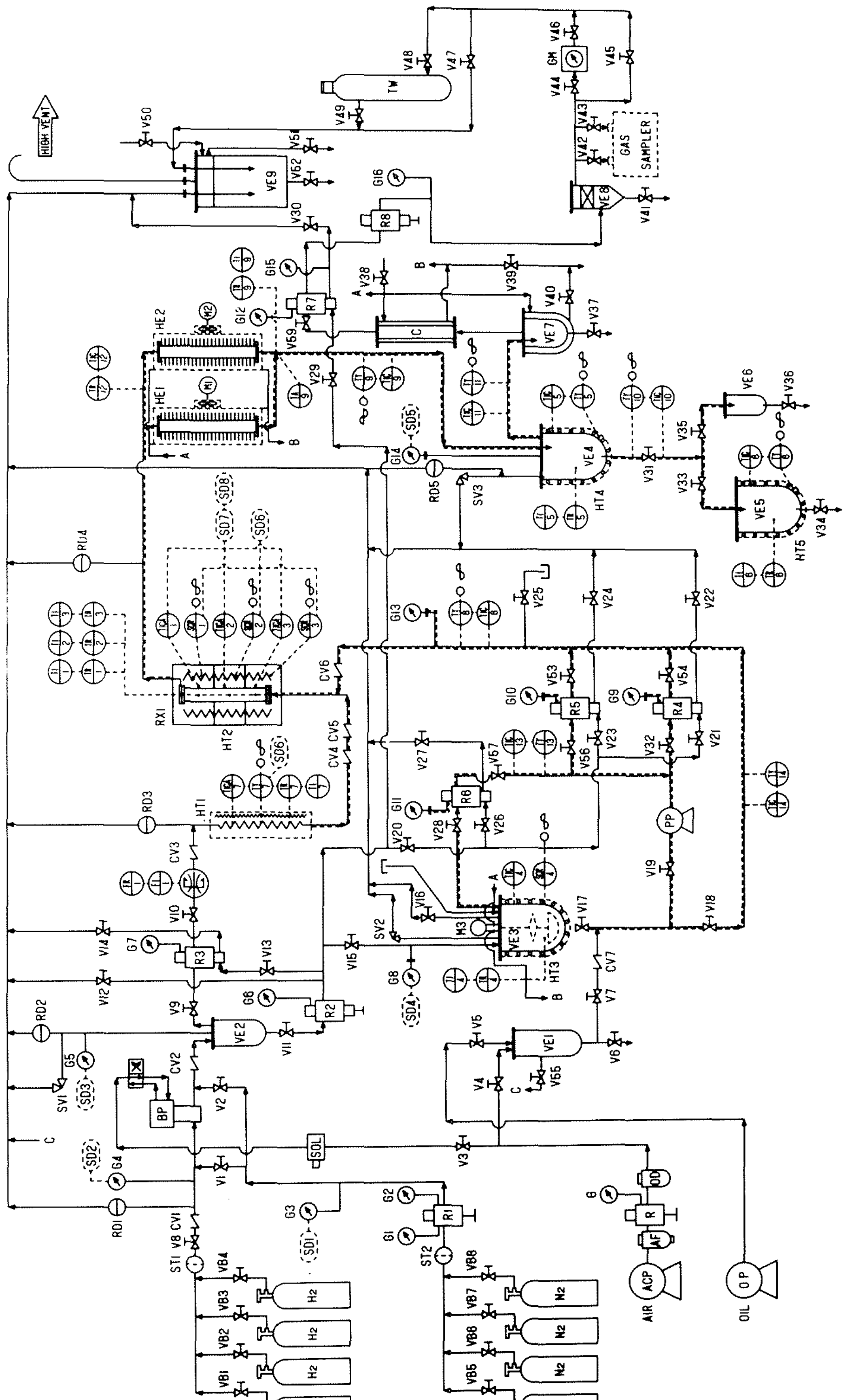

Fig. 1 Flow diagram for Coal Hydrogenation Micro Reactor Test Unit (M−I)

ンプでは，低流速(500 cm^3/h)の運転をした場合に所定の吐出圧がでなかったり，10%濃度のクレオソート油ー石油スラリーでもチャッキ弁が閉塞するなどの問題点が多く，このままで石炭スラリーを用いた総合運転を行なうことは得策ではないと判断し，ＭＩの各パーツを分解，分離して新しいシステムを組立て，試運転することになった。

3．1．2　マイクロリアクターＭII　　ＭIIのフローシートをFig. 2に示す。ＭIIは，ＭIの複雑な系を改良するため装置全体を上下二段組の広いスペースに移動し，さらにスラリー系統のラインを単純化するために，原料供給用のプランジャーポンプ（PP）は切り離した。反応系の昇圧およびスラリー流量調整は窒素ボンベ圧による圧入法とし，VE3（最大５ℓ）に充塡したスラリーが流出を完了したら運転は終了である。ガス系統も反応器への水素ガス吹き込み用ブースターポンプ（BP）のラインを切り離し，VE3中のスラリーの圧送とその流量調整のためのN_2ガスのラインのみとした。反応器中への水素ガスの吹き込みはＭIIの操作および操作条件が確立す

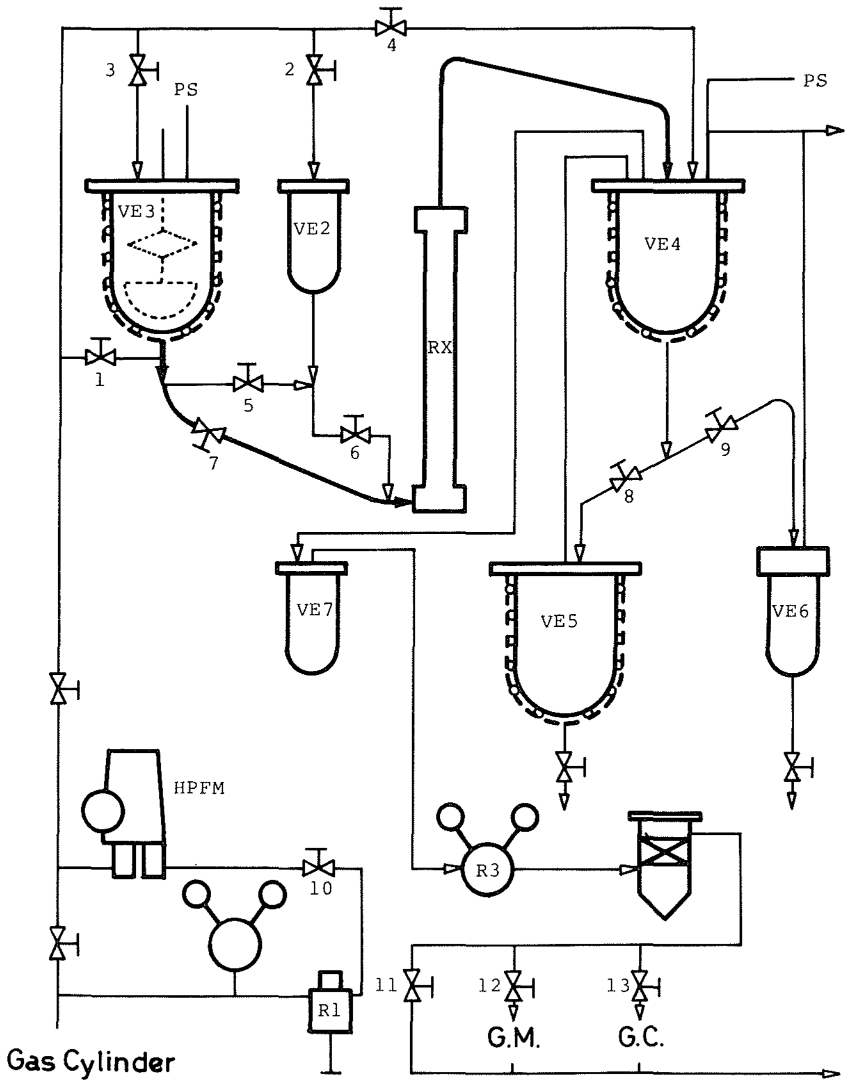

Fig. 2　Flow diagram for Coal Hydrogenation Micro Reactor Test Unit (M－II)

るまで中止することにした。

このＭIIの特徴は高圧系において所定圧を維持した場合，VE3に圧入されたガスがスラリーを押し出し，そのスラリーが反応器Rx* を通り，VE4に入ったスラリー量だけのガスを押し出すことにある。すなわち入力ガスは調圧弁（R1）により所定圧に維持されるので，出力ガスの流量を調圧弁（R3）で制御すれば定常流を得ることができる。したがってR3通過後の常圧系のガス流量を湿式ガス流量計（GM）とフロートメーター（FM）で測定すれば，Boyle-Chalesの関係式より高圧系におけるスラリー流量を推算できる。例えば，5 MPa, 473 Kの反応系へ1 ℓ /hのスラリー流量を得ようとする場合，出口ガス流量を約81 ℓ /hで抜き出せばよいことになる。この流量は，入口側の高圧ガス流量計（HPFM）および運転終了後VE6のサンプリングした試料の量と，要した時間からも確認できる。定常状態はVE3, 4の圧力センサー（PS），数ヶ所に取付けた熱電対による温度センサー（TS），および入口ガス流量と出口ガス流量（GM）により確認できる。なお，非定常状態でのスラリーはVE5へ，定常状態のものはVE6へとVE4から重力落下させる。Fig. 3は，TSによりモニターした記録チャートの一例である。図中の定常状態の区間が，サンプリング時間に対応する。なお，詳細は後述する。

3．2　反応操作

3．2．1(a)　石油系分解軽油による液化　　ＭIIは反応圧力を窒素ボンベ圧に依存することから従来の液化条件よりもいくらか低い条件での反応系を選択しなくてはならない。そこで，石油系

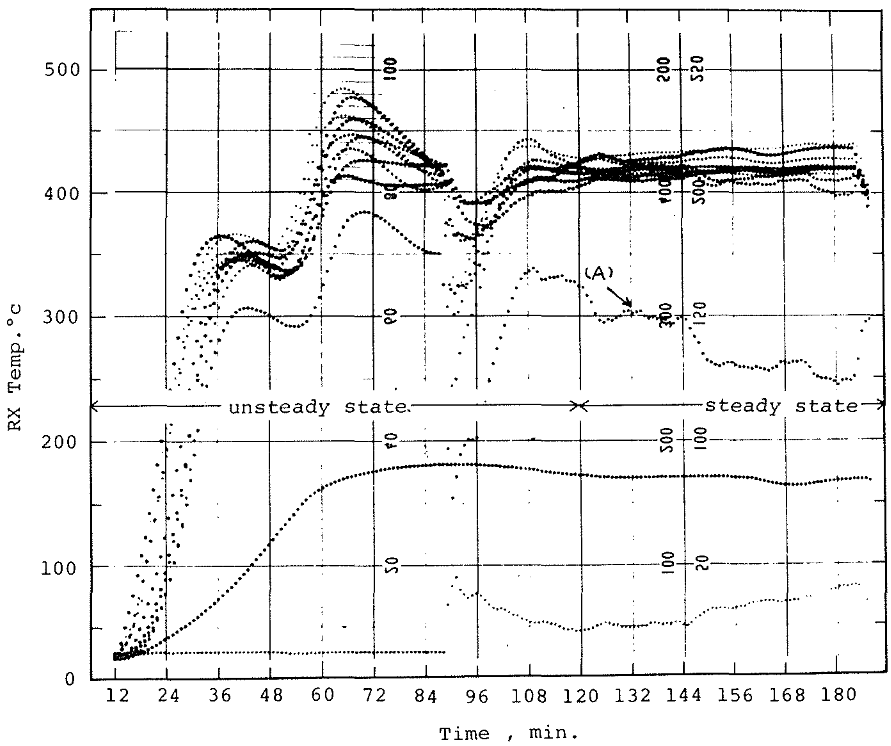

Fig. 3 Temp. distribution in the MII-RX for Run2 of coal liguefaction with CAO-oil

---

*Rx : 2cmφ×100cm

分解軽油（LFG）による石炭の可溶化反応，すなわち水素を用いない石炭の液化法とその生成物固体を脱晶アントラセン油（CAO）溶媒を用いて低分子化させる基礎実験を行なった。この石炭可溶化反応については，回分式オートクレーブ実験より，無触媒，見掛け反応時間 120 分，圧力約 5 MPa，および反応温度 600～650 K にて 40～50％のピリジン可溶化率（PS）を得ている[1]。さらに，触媒に p-トンエンスルホン酸（PTS）を使用した場合，473 K にて 90％にも達する。本反応は反応温度到達時点にてすでに 70％近い可溶化率となっているので，PTS 触媒を用いた反応条件で運転することにした。

石炭試料と触媒には回分式実験と同じ太平洋炭と PTS を使用したが，分解軽油には沸騰床になるのを避けるため，LFGよりも高沸点領域にある HFG を使用した。また可溶化に有効な成分のひとつであるオレフイン含有量が LFG に比べ HFG の方が少ないので，回分式実験で得た最適な石炭，触媒，溶媒の比率である 1：1：5 よりも溶媒比の大きい 1：1：25 にした。

3．2．1(b)　脱晶アントラセン油を用いた液化　　CAO 油と石炭の直接液化条件は，先に行なった赤外線イメージ炉による高速昇温の小型回分式オートクレーブ実験結果[6]に基き，また回分式と流通式との実験結果と比較検討するために，反応温度 653～683 K，反応圧力 5 MPa，反応時間 5～20 分の範囲で行なった。試料には，太平洋炭，溶媒には CAO 油を用いた。回分式実験では，ヘリューム雰囲気の他に水素雰囲気を用いているが，M II ではスラリーを圧入するためと CAO 油の低沸点分の揮発を抑制するためにのみガス圧を利用し，気液あるいは固気液反応は行なわせないので，水素の代りに窒素を用いた。

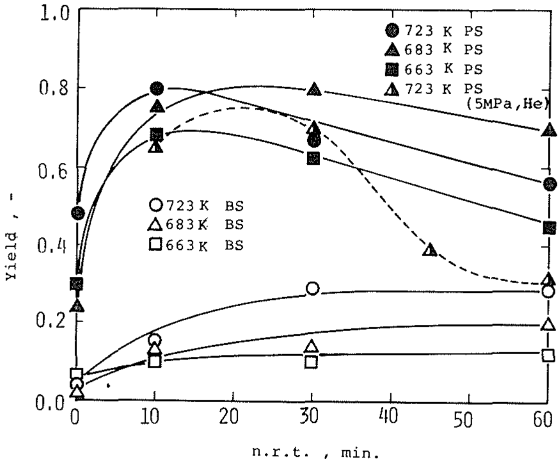

Fig. 4　Change of PS and BS yield with reaction time for Yubarishinko coal

回分式実験の結果の一例を Fig. 4 に示す。一般的には，石炭の液化反応は，次のように表わされる[7)~12)]。

Coal → Preasphatlene → Asphaltene → Oil

Fig. 4 から明らかなように水素が共存しない場合には，Preasphaltene（ピリジン可溶―ベンゼン不溶分），Asphaltene（ベンゼン可溶―n-ヘキサン不溶）および Oil（n-ヘキサン可溶）のうちのある種のものは重縮合してピリジン不溶分を生成する。すなわちコーキング反応が進行する。このコーキング反応は流通式反応装置の定常運転を妨害する大きな因子のひとつであるので，これを避けるために，反応温度を 723 K 以下，滞留時間を 20 分以内にした。この反応時間内では H_2，N_2 の相違にかかわらず，ピリジン可溶化率 60％以上に達するので，反応器形式や形状の違いによるデータの比較検討は容易にできるものと思われる。

3．3　運転状況

3．3．1　目視実験　　運転は常温常圧での塩化ビニル樹脂およびガラス管からなる模擬装置による目視実験から開始した。石油系分解軽油油による石炭の可溶化反応における触媒 PTS は常温で固体であるため除き，石炭（－100mesh）と HFG だけの系で行なったところ，均一濃度で

スラリーが流れることを確認した。

３．３．２　加圧系流通試験　　石炭スラリーを圧力５MPa，常温にて流し，流量制御系の操作が良好に稼動するか否かを調べた結果，高圧用調圧弁（HPFM）が緩慢なON-OFFを，時には突発的に流れ出すので，HPFMの先にさらにニードルバルブ⑩を設けて流量調整するようにした。またVE4からVE5, 6へスラリーが落下する際，気液の置換が悪いので各々に同圧ラインを設けた。

実際の反応条件での運転は，沈降速度を下げるために，乳鉢で粉砕した太平洋炭200ｇとPTS 200ｇにHFG 2500ｇをVE3に充填し，VE4→Rx→VE3のラインでVE3の下から圧をかけながら昇温し，VE３を150℃，Rxを200℃に設定した。スタートアップを含めスラリーの流通試験に成功したのは28回のランのうち１回のみであった。この時は２時間近い定常運転を行うことができた。平均スラリー流量は1.4 ℓ/h（反応器滞留時間13.6分），設定圧力は，6.5 MPaであった。試験が不成功となった運転のうち，流通系の閉塞は主にスタートアップ直後の場合，すなわち，（ａ）VE3下部から流出する時と（ｂ）Rxにいたるライン，（ｃ）反応器内での場合とに大別される。（ａ）の場合，VE3における撹拌効果が悪いか，昇圧直後に大粒子が沈降したと思われるので，VE3下部出口にパイプを立てられるように改良し，粗粒の流出を防ぐようにした。さらに，Fig. 2に示したようにVE2，バルブ①②⑤⑥⑦を設け，スタートアップ時にはVE2に充塡した軽油を流し，Rxを通過した段階で，VE3からのスラリーラインに切換える方法を採用した。スタートアップ時の使用ラインは①→VE3（粒子の沈降防止）→③→②→VE2→⑥→Rx→VE4である。

以上の改良によりスタートアップ直後の閉塞は解決されたが，反応器内の閉塞は解決できなかった。この原因は、反応器内で粒子が沈降するか，石炭粒子と媒体油との強い相互作用にもとづく異常な高粘性によるものと考えられたので，再度ガラス管により組立てた模擬装置を用いて常温常圧実験を詳細に行なった結果，閉塞時のスラリーを使用して0.3 ℓ/hの低流速でも，また100−60 meshの粗大粒子を用いた40％スラリーでも均一に流すことができた。高温下では媒体油の粘度が低下し粗大粒子が容易に沈降するようになることが考えられるので，これを防止する

Table 2. Effect of the reactor type on the extent of dissolution.

Reactor	Temp. K	Press. MPa.	NRT[1](HT[2]) min.(K/min.)	Coal/PTS/Solv.	PS[3] %
M-II, Rx	473	6.6	13.6 (50)	1/1/5(HFG)	17.6 *
(tubular)	473	5.5	9.4 (50)	1/1/5(HFG)/25(LO)	11.9
Batch[4]	473	5.1	10.0 (120)	1/1/5(HFG)	14.3
	473	5.1	10.0 (120)	1/1/5(LFG)	13.0
	473	5.1	30.0 (120)	1/1/5(LFG)	32.4
Batch[5]	473	5.1	10.0 (3−6)	1/1/5(HFG)/3(LO)	34.8
Batch[6]	473	5.1	30.0 (　3)	1/1/5(LFG)	99.2 *

1)　NRT = nominal reaction time
2)　HT = heating rate
3)　PS = pyridine solubility
4　Rapid heating micro-autoclave with image furnace
5)　M-II, VE3
6)　Slow heating, 300cc-autoclave
7)　LO=light oil

ため，石炭粒子をボールミルにより微粉砕（－200 mesh）して沈降を，また軽油でスラリーを希釈することにより高粘性化を防ぎ，流した結果 2 ℓ/h で 20 分間流すことができた。

しかしながら，Table 2 の分析結果にみるように，原炭のピリジン抽出量程度しか反応が進行していない。反応を十分に進めさせるためには，反応条件を再検討し，安定なスラリーを流すためには，反応器を設計し直す必要があり，本反応および操作条件での運転を一応打ち切った。

次に CAO 油と太平洋炭の直接液化反応条件の運転結果について述べる。先ず CAO 油の低沸点分での揮発を防ぎ，また水素供与性溶媒として添加するテトラリンの CAO 油に対する効果を明確にするため，つぎのような条件で配合油を調整した。すなわち，テトラリン 0.8 kg と CAO 油 2.6 kg を VE3 に充填し，そのまま VE3 を回分式反応器とし，圧力 5 MPa, N_2 ガス下で昇温速度 2.6 K/min, 保持温度 716 K の条件にて 1 時間 30 分反応させた。その結果，2.76 kg のテトラリンを含む CAO 油高沸点分と 0.43 kg の低沸点分を得た。このことから，CAO 油の低沸点成分の揮発の影響はきわめて少ないと判断し，流通系反応装置 M II を使用して CAO 油のみの流通試験を行なった。その結果，安定した定常運転が可能であることを確認した。

現在まで 2 回のスラリーによる運転を試み，2 回とも定常運転に成功している。スタートアップは HFG 溶媒による可溶化実験と同じく，VE2 に充填した CAO 油を先に流す方法を採用した。Run 1 は，先のテトラリンを含む高沸点 CAO 油を使い 1.3 ℓ/h を 1 時間，Run 2 は 0.75 ℓ/h で 2 時間の定常運転ができた。反応条件は，分析結果と合せて Table 3 に示す。反応器内の温度分布は，下部から 20, 35, 50, 65, 80 cm の位置の内部，外部合せて計 10 点測定した結果，35 cm の位置（A点）までほぼ直線的な温度勾配と考えられ，入口温度は 693 K（VE 3 内部温度は 450 K）とすると，昇温速度は，約 45～50 K/min になっている。Fig. 3 に示すように，A点以上のところでは，内部温度で 10 K以内，反応器の内外の温度分布を合せても 30 K以内の範囲にあり，かつこの範囲内での定常運転であった。実験終了後，ほぼ全量のスラリーが回収できた。CAO 油がベンゼン可溶であることを利用し，VE 3 の未反応原料スラリーを分析した結果，充填時の石炭/溶媒比は変わっていなかった。このことは運転中のスラリーは均一であったと判定できる。換言すれば，スラリー調整した濃度で定常にて流れることを意味する。なお，Table 3 に示した分析結果は VE 6 でサンプリングしたものを使用した。また，このサンプリングしたスラリー重量とサンプリング時間から求まるスラリー流量と，G. M. で測定したガス流量とは Rum 1, 2 とも良好な一致を示した。

これらの運転に必要な所要時間は，定常状態で流通出来た場合，VE 3 の 4 ℓ を全量 1 ℓ/h で流したとして 4 時間，昇圧昇温に 1 時間，冷却に 6 時間，洗浄に 3 時間の計 14 時間程度であり，2 日に 1 回の割合でデータをとることが可能である。しかしながら，固液分離（現在濾過）および分析に 2 日以上を要する。スラリーの流通に失敗した場合も，解体と組み立て，ガス漏れチェックなどを含め 2 日程度必要である。また，運転人員は順調な場合でも 2 名を必要とする。

Table 3. Effet of reactor type on the extent of pyridine(ps)and benzen solubility(BS)

Reactor	Temp. K	Press. MPa	NRT (HT) min. (K/min.)	Coal/CAO	BS %	PS %
M-II, Rx	673	5.1 (N_2)	12.0(45)	1/10[1]	56.1	64.7
	683	5.3 (N_2)	20.0(45)	1/9	41.9	73.0
Batch[2]	683	5.0(He)	20.0(141)	3/7	18.0	54.8
	683	5.0(He)	5.0(154)	3/7	10.2	55.0

1) heavy portion of CAO
2) Rapid heating micro-autoclave

4．考　　察

4．1　石油系分解軽油による石炭の可溶化反応

Fig. 5に，石炭の粒径と粒子の沈降速度（Stokesの式）[11]との相関関係を溶媒にHFGを使用した場合について示す。HFGの粘度は実測出来なかったが，一般の軽油から自動車用ガソリンの範囲にあるとすると，常温で0.73～4.67 cSt, 473 Kでは0.21～0.41 cStとなる[14]。Fig. 5の右縦軸にはMIIの反応器中のスラリー流量を示した。この図より－200 mesh粒子（74 μm以下）は常温で曲線(c)と(d)の範囲，すなわち0.01～0.16 cm/secの範囲にあり，スラリー流量としては，最低でも0.25 ℓ/hが必要であり，粒子がまったく沈降しない安全圏は，2 ℓ/h以上となる。それに対し473 Kでは－200 meshとした時，曲線(a)と(b)の範囲，即ち最低流量は3 ℓ/hが必要である。これらは実験結果をよく説明するとともに，閉塞の原因がやはり粒子の沈降であったことを示している。粉砕することにより1 ℓ/hの流量で沈降を防ぐためには40 μm以下になっていなくてはならないのであるが，反応による膨潤や粒子同志の凝集を考慮すると，それでも閉塞する可能性はある。HFGよりはいくらか高い粘度の軽油で希釈し，かつ相当に微粉砕した石炭粒子にて20分間流れた実験でも，時間の経過とともに粒子濃度は次第に増大し，このため，系は閉塞しがちとなり，最終的に閉塞に到ったものと考えられる。結局，粒子を微粉砕する手段は決定的な解決法にはならない。また，高流速で流した場合には滞留時間が短く，反応が進行しない。

今後考えられる操作としては，CAO油などによりスラリーを重質化させること，あるいは攪拌槽型の流通反応器に変えることである。前者についてはまだ十分に検討されていない。後者については，VE 3を回分式反応器として利用し，反応終了後抜き出した実験から，異常粘性などによる閉塞はなく順調に抜き出すことができた。この時の実験条件および分析結果をTable 2に示した。パイプラインは4 mmφI. D.を使用しているので，MIIの管型反応器の25倍の線速度となり，粒子沈降の可能性はない。したがって反応器のみを攪拌槽型に置き換えることは，粒子沈降による閉塞の問題を解決する有効な手段となるばかりでなく，滞留時間も長くすることが可能となる。

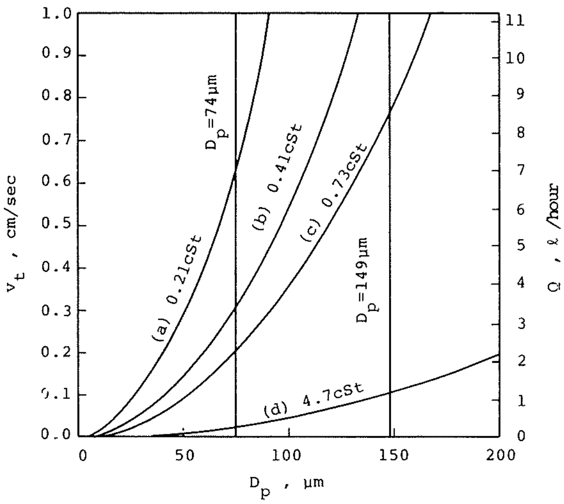

Fig. 5　Effect of the diameter of coal particle on the falling velocity in cracking light oil

次に反応の問題については，管型反応器の昇温速度に近いかあるいはそれ以上の速度で昇温できる赤外線イメージ炉を用いた急速昇温小型回分式オートクレーブにより行なった結果をTable 2に示した。昇温に2分以内，保持時間10分の反応結果からも明らかなように，MIIの可溶化率同様きわめて低い。ただしピリジン抽出方法は，＊印のついたものが4時間煮沸，6時間ソックスレ抽出であるのに対し，それ以外は3時間煮沸のみである。以上の結果から，遅速昇温の回分式実験による可溶化反応は，昇温段階にてかなりの反応が進行していると考えられるので，今後高速昇温による初期反応データを調べ，流通反応器の操作条件決定に役立てることが重要と思わ

れる。

4．2　脱晶アントラセン油を用いた液化

CAO 油を溶媒とした石炭 10%のスラリーでは，HFG の場合に比べて，粒子の沈降速度が 10^{-4} order も低く粒子沈降による閉塞は全く問題にならない。計算に用いた CAO 油の粘度は，最近の高温，高圧下における脱晶アントラセン油および石炭スラリーに関するデータ[15]に依った。またこの報告によると 573−673 K の温度で粘度がさらに 1 order 以上増加する。この急激な粘度上昇は粒子沈降を抑える意味からは望ましいことであり，この現象は操作上注目すべきことである。

Table 3 に示した分析結果からは，クレオソート油を用いた急速昇温による回分式実験 (Fig. 4) よりもベンゼン可溶化率 (BS) は大きな値を得ている。炭種，溶媒，および反応器などの相違により反応特性が異なることは十分予想されるので[11][16]，ここでは，急速昇温の回分式実験により，M II で行なった実験 (Run 2) を追証した。その結果を Table 3 に合わせて示した。先より明らかなようにクレオソート油ー夕張新鉱炭のデータと大差がないことが明らかになった。条件の相違は，スラリー濃度と昇温速度であるが，昇温速度は，回分式反応器の方がむしろ速く，反応時間は長いと考えられるので，データの相違はスラリー濃度によると推定される。つまり CAO 油中に多くの水素供与性溶媒 (HDS) の存在を確かめたことになる。また 2 回の流通式実験結果を比較した場合わずかの HDS としてテトラリンを含む高沸点 CAO 油の方が低沸点分を含む CAO 油の方よりも高い BS 収率を得る，あるいは溶媒の効果を無視した場合，PS 収率と BS 収率とでは温度依存性が異なっていると考えられるが，データ数も少なく，十分な考察はできない。

しかしながら，M II 型の管型流通反応装置を組み立て，この操作および操作条件がほぼ確立されたことで，本方式により得られる石炭液化反応の速度論的データは今後の液化反応装置を設計およびプロセス開発する場合にきわめて有用であろう。

5．結　　言

管型流通反応装置 (M II) を用いて，石油系分解軽油による石炭可溶化反応に関する実験では現状の装置を用いた場合，石炭粒子の沈降速度よりも速い空塔速度でスラリーを流通させなければならず，可溶化率を上昇させることはきわめて困難である。本反応を適用するためには，M II の反応器を管型のまま塔長を長くするか，撹拌槽型に改造する必要がある。あるいは，石炭粒子の沈降速度を下げるために高粘度溶媒を添加して，反応温度でのスラリーの安定性を向上させることが必要である。

流通反応器を模擬した小型急速昇温回分式オートクレーブにより，従来の遅速昇温法では得ることの出来ない反応初期過程を詳細に調べ，これらの知見を基にして流通反応器の滞留時間を決定し，最適の可溶化率を得るように反応操作を行なうべきであることが明らかとなった。

流通式反応装置を用いて，直接液化条件で行なった実験では，粒子沈降による閉塞などの問題はなく，きわめて良好な定常運転を実施することができた。また急速昇温回分式オートクレーブ実験とほぼ同一条件では，流通方式の場合に高い液化率を得た。

以上，石炭液化流通反応装置による実験より，操作法および操作条件をほぼ確立したので，今後は急速昇温法による回分式実験とを並列して行ない，反応器，炭種，溶媒などの操作条件の相違を反応速度論的研究にしてゆく予定である。最終的には，ポンプおよびガス供給系を接続し，連続石炭液化プロセスにおける問題点を把握してゆく計画である。

参　考　文　献

1）小野重好，千葉忠俊，真田雄三：日化，**6**，874（1980）
2）F. Bergius, *J. Gas. Beleucht.* 54 748 (1912)
3）F. Bergius, B. Willer, *German patent*, 301, 231 (1913)
4）前河涌典：化学装置　11，1（1979）
5）白戸義美，鈴木昭，片山優久雄，大内公耳，伊藤博徳，牧野和夫，真田雄三，武谷愿　石炭系資源実験施設年報　1，47（1975）
6）守富寛，佐藤卓，成瀬雅彦，千葉忠俊，真田雄三：化工 14 回秋季大会要旨集（1980）
7）S. Weller, M. G. Pelipetz, S. Friedman : *1nd, Eng, Chem,* 43, 1575 (1951)
8）E. Falkum, R. A. Glenn, Fuel, 31, 133 (1952)
9）石井忠雄，前河涌典，武谷愿：化学工学，29,，988（1965）
10）D. C. Cronauer, Y. T. Shah, R. G. Ruberto : *1nd, Eng, Chem, Proc, Pes, 4, Dev.* 17, 281 (1978)
11）千葉忠俊，真田雄三：燃協誌　57，259（1978）
12）C. Y. Wen, S. Tone : *ACS, Sym, Ser,* 72, 56 (1978)
13）G. G. Stokes : *Trans, Cambrige Phil. Soc.* 9, 8 (1851)
14）出光技術資料
15）T. Okutani, S. Yokoyama, Y. Maekawa : *Fuel,* 59, 67 (1980)
16）千葉忠俊，真田雄三：化学工学，43（12），37（1979）
17）真田雄三，横山晋，千葉忠俊：触媒　22（2），60（1980）