

| | |
|-----------|--|
| 氏 名 | あら い ゆたか 荒 井 豊 |
| 授 与 学 位 | 工 学 博 士 |
| 学位授与年月日 | 昭和 62 年 9 月 9 日 |
| 学位授与の根拠法規 | 学位規則第 5 条第 2 項 |
| 最 終 学 歴 | 昭和 58 年 3 月 東北大学大学院工学研究科資源工学専攻 前期 2 年の課程修了 |
| 学位論文題目 | 高粘度溶融ピッチのろ過に関する研究 |
| 論文審査委員 | 東北大学教授 八嶋 三郎 東北大学教授 大谷 茂盛 東北大学教授 臼井進之助 東北大学教授 野田 佳六 |

論 文 内 容 要 旨

黒物と呼ばれる石炭，ピッチ，タール等の炭素を主体とする物質は炭素材原料として注目されている。特に，近年になりピッチを原料とする炭素繊維の開発が行なわれるなど，ピッチ類の高度利用に関する研究は高機能性材料の開発と資源の有効利用という観点から社会的にも注目される課題の一つとなっている。

ピッチは元来非常に複雑な分子構造を有する物質の混合物で，これらピッチの高度利用に当たってはピッチを精製する必要がある，ろ過分離はピッチ類の精製には不可欠な単位操作の一つであることが知られている。

そこで本研究では種類も性状も様々なピッチの中で，大量に副生され，また，固液分離の対象がピッチ中に存在する液体状の光学的等方性組織と異方性組織の分離と考えられるユリカプロセスから得られるユリカピッチを用いて実験的検討を行なうことによって高粘度溶融ピッチのろ過機構を明らかにし，さらにこの種の物質の工業的ろ過分離法を確立することを目的とした。

本研究では既往における工業ろ過理論に立脚し，溶融状態にある高粘度ピッチのろ過過程に関して実験的検討を行ない，また，ここで得られたろ過過程を一般工業で知られるろ過過程と比較検討することによって，高粘度溶融ピッチのろ過過程あるいはろ過機構を明らかとする。つぎに，溶融ピッチのろ過分離の工業化を前提として，ピッチを扱ううえで配慮されるべき問題点について触れ，さらに，この種の高粘度溶融ピッチのろ過でもっとも問題と考えられる，ろ材の逆洗や洗浄に関し

て、パイロットプラントによる操業試験を行ない、工業化の可能性を示唆した。

本論文はつぎの6章より構成されており、以下に章を追って概要を記す。

第1章 緒論

第2章 高粘度溶融ピッチの定圧ろ過に関する研究

第3章 高粘度溶融ピッチの定速ろ過に関する研究

第4章 高粘度溶融ピッチ中におけるメソフェース球体の分散破壊

第5章 パイロットプラントによる高粘度溶融ピッチのろ過システムに関する研究

第6章 結論

第1章は緒論であり、高粘度溶融ピッチのろ過に関する研究の重要性について述べ、本研究にかかわるろ過の研究の現状を明らかにするとともに、研究の方針と内容の概要を述べた。

第2章では高粘度溶融ピッチのろ過性を明らかにするために、ろ過理論がほぼ完成されている定圧ろ過系において実験的な検討を行ない高粘度溶融ピッチの定圧ろ過過程を明らかにした。

まず、溶融ピッチの流動特性を明らかにし、非ニュートン流体も含めた定圧ろ過速度式の検討を行なった。また、実験には高温高粘度状態においても使用可能な円筒ろ材を用いるので、既往の非1次元ろ過速度式を整理して、実験結果の解析に用いた。ろ過温度、ろ過圧力のろ過操作条件を変えた実験から、高粘度溶融ピッチの定圧ろ過過程はRuthのケーキろ過速度式が成立する初期ろ過過程と、平均ろ過比抵抗がろ過の進行とともに増大する後期ろ過過程の2つの過程に分けられることを明らかにした。これから、ケーキろ過速度式が成立する初期ろ過過程につき、ケーキ平均空隙率およびろ過平均比抵抗などのろ過性を表す基本的物性の温度および圧力による変化を表す実験式を求めた。

つぎに、後期ろ過過程に関して検討を行ない、このろ過過程がHermans-Bredée-Graceが提唱した標準閉塞ろ過式で表されることを明らかにし、また、ろ過操作条件と閉塞ろ過式を構成する物性定数との間の実験式を求めた。これらの結果から溶融ピッチの定圧ろ過過程の推定を可能なものとした。

ついで、ろ過ピッチとケイソウ質ろ過助材混合物による定圧ろ過実験から、高粘度溶融ピッチのろ過機構は光学的異方性物質（メソフェース球体）がろ材表面に堆積しながらろ過が進行する初期ろ過過程と、等方性ピッチ中に微量に存在する未溶融成分がケーキ間隙に拘留蓄積して空隙を閉塞していく、後期ろ過過程で構成されていることを明らかにした。

第3章では実際の工業におけるろ過操作形式の中で、高粘度溶融ピッチのろ過操作形式として最も適すると考えられる定速ろ過に関して実験的検討を行ない定速ろ過過程を明らかにし、定圧ろ過挙動から定速ろ過過程の推定を可能なものとした。また高粘度溶融ピッチのろ過機構をさらに詳細に検討した。

まず、第2章における定圧ろ過過程から、定速ろ過過程の推定式の誘導を行なった。定速ろ過過

程を定圧ろ過の場合と同様に、ケーキろ過則が成立する初期ろ過過程と、標準閉塞ろ過が成立する後期ろ過過程で表されるものと考え、定速ろ過過程の推定式を明らかにした。ついで、この推定式と定速ろ過実験の結果を対比することによって、定速ろ過では定圧ろ過において観察された閉塞ろ過現象が生じていないことを明らかにした。

つぎに、先の推定式を広範なる過速度範囲にも適用可能なものとするために、ろ過比抵抗増加速度を導入することによって、定速ろ過過程を表すことを試みた。ろ過比抵抗増加速度はろ過によって形成されたケーキ内粒子の移動および変形によるろ過比抵抗の時間当りの変化率を表したものである。この概念を用いることによって、定圧ろ過実験から得られた結果をもとに広範なる過操作条件下における定速ろ過過程の推定が可能であることを明らかにした。

さらに、定速ろ過および定圧ろ過によって形成されたろ過ケーキ内の空隙率分布の測定と、ピッチ・ろ過助材スラリーを用いた定速ろ過実験による考察から、高粘度溶融ピッチの定圧ろ過でみられる後期ろ過過程は、溶融ピッチのケーキが極度に圧縮性が強くこのためろ材近傍で著しく空隙率が減少し、この空隙率が減少した部分で閉塞が生じていることを明らかにした。

第4章は、ろ過分離操作を工業装置へスケールアップする際に特に問題となると考えられる、粒子の分散破壊現象に着目し、高粘度溶融ピッチに含まれる固体粒子であるメソフェース球体の分散破壊について実験的検討を行なったもので、高粘度溶融ピッチを扱う際の操作条件およびろ過装置設計の際の定量的設計基準を明らかにした。

まず、既往における凝集体の分散等の研究をもとに、高粘度溶融ピッチを扱ううえで極めて重要であると考えられる、固液分散系における粒子の分散破壊現象に関し整理を行なった。その中で、高粘度溶融ピッチを取り扱うプロセスで最も重要と考えられる、円管流動時に生じるせん断場を取り上げて実験的検討を行なった。これから、メソフェース球体の破壊が円管流動時に生じる平均せん断応力とよい相関があることを明らかにした。ついで、メソフェース球体はせん断場における平均せん断応力の値が1 kPa程度から分散破壊し、このときのメソフェース球体はせん断力によってこれを構成する単位微粒子に崩壊分散するのではなく、数個の大きな破砕片となることを述べ、高粘度溶融ピッチ中のメソフェース球体の力学的特異性を明らかにした。また、このメソフェース球体の破壊の特異性が球体生成の際の積層欠陥によるものであることを考察した。

第5章では、工業規模でのろ過操作を行なうことを前提として、ろ過操作に続いて行なわれるろ過ケーキのろ材からの剥離、抜き出し、ろ材の洗浄、再生といった一連のろ過システムについて小型の実験装置を用いて実験的検討を行なった。さらに、第2章、第3章、第4章で得られた結果をもとにしてパイロットプラントの設計、建設を行ない、高粘度溶融ピッチの工業的ろ過分離操作につき実操業試験を行なった。

まず、高粘度溶融ピッチのろ過システムとしてろ過、高温不活性ガスによる逆洗、原料ピッチとろ過ケーキ混合物のガス吹き込み攪はんによる分散、溶解とケーキの排出、流動接触分解装置残油によるろ材の洗浄、再生という一連の工程を考案した。

ついで、小型試験装置により、上述の一連の工程につき実験的確認を行ない、各工程における操作条件を明らかにし、これらの結果をもとにして、パイロットプラントの仕様を定め、設計、建設を行なった。このパイロットプラントを用いた長期間にわたる操業試験によって、ろ過、逆洗、洗浄等の一連の工程が適切に行なわれることを確認し、工業的な高粘度溶融ピッチのろ過分離が可能であることを確かめ高粘度溶融ピッチの工業的ろ過分離システムを確立した。

第6章は結論であり、各章の内容を要約して述べた。

審査結果の要旨

ピッチから炭素繊維等の付加価値の高い機能性材料の原料を分離精製して、その高度利用を図るための有効な方法の一つはろ過操作であるが、高温における高粘度の溶融ピッチのろ過に関する研究はきわめて少なく未解明な問題を数多くかかえている現状である。

本論文は高温下で溶融状態にある高粘度ピッチのろ過操作に関するものであり、そのろ過機構を解明すると共に工業的ろ過分離システムを確立することを目的として行われた研究成果をまとめたもので、全編6章より成る。

第1章は緒論であり、既往のろ過理論を要約し、合わせて本研究の意義と目的を述べている。

第2章では各種要因下で定圧ろ過実験を行った結果を述べ、溶融ピッチのろ過過程は初期と後期の2つに分けて表すことができ、初期ろ過過程はケーキろ過則に、また後期ろ過過程は標準閉塞ろ過則にそれぞれ従うことを見だし、また後期ろ過過程はその中に含まれる微量の未溶融物質がケーキの間隙を閉塞するために生ずることを明らかにしている。

第3章では定速ろ過実験を行った結果を述べ、定速ろ過ではろ材近傍におけるケーキの空隙率が定圧ろ過の際のそれよりも大となるので初期ろ過過程領域が増大することを明らかにすると共に、ろ過比抵抗増加速度の概念を導入することにより定圧ろ過実験結果から定速ろ過過程を推定することが可能であると述べている。これらの結果は著者が導いた重要な成果のひとつである。

第4章では溶融ピッチが円管を通過する際のせん断場によりメソフェース球体の破壊実験を行った結果を述べ、流体せん断場の応力が約1 kPa以上となると球体が破壊することを明らかにし、球体の破壊を防止するために必要なろ過装置設計の指針を与えている。

第5章では前章までの結果に基づきパイロットプラントを設計、建設して試験を行い、高温における高粘度溶融ピッチのろ過システムを完成した結果を述べている。

第6章は結論である。

以上要するに本論文は、高温下で溶融状態にある高粘度ピッチのろ過操作に関する研究を行い、ろ過機構を解明すると共にそのろ過分離システムを確立したものであり、鉱物処理工学、分離工学ならびにこれらに関連する工業の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。