総 説

石炭の液化に関する特許動向調査

— 1991. 4. 8 受理 —

東京農工大学 平 戸 瑞 穂

1. 緒 言

特許は各自が開発した技術の成果であり、その発明に対しては優先権が保証され、法的にも手厚く保護されている。工業化に際してもきわめて有利な立場にたてるので、技術者は自分の開発した技術の心髄を特許として出願するのが普通であり、従って特許はその分野の技術水準、技術動向を知る格好の資料であり最高の文献である。

このような事情から昭和49年度サンシャイン計画の発足と同時に、新エネルギーに関連した石炭関係の特許調査が工業技術院・日本産業技術振興協会により始められ^{1)~3)}、現在まで続けられている。著者はこの調査に早くから参加し、石炭の液化、ガス化、石炭混合燃料（COM, CWM）に関する国内公開特許に目を通してその動向、特徴

ある特許の紹介を行ってきた。そこで、最近の3年間に公開された上記3部門の特許について、その概要と動向を紹介する。

これらの特許調査は統計の都合により前年の11月からその年の10月までを各年度として集計したが、10月までの公開特許は同一技術体系の一区切りである場合が多く、偶然ではあったがたいへん都合のよい年度単位であった。

2. 新エネルギーを対象にした石炭関係公開特許の動向

新エネルギー対象の石炭技術部門として、液化、ガス化、COM, CWM等石炭混合燃料を採り上げ、1977年から1990年の14年間に公開された特許件数の推移を調査した。これらの結果を図1に示す。

図1 石炭新エネルギー関係公開特許件数の推移

表 1 石炭新エネルギー関係公開特許出願国別分類

分類 出願国	総件数			液 化			混合燃料			ガス化			ガス化発電			燃料組成物		
	90年	89年	88年	90年	89年	88年	90年	89年	88年	90年	89年	88年	90年	89年	88年	90年	89年	88年
日本	82	144	206	13	10	18	35	93	127	27	36	52	6			1	5	9
アメリカ	8	8	4	1	2	1		4	1	7	1	2					1	
オランダ	6	1	1							6	1	1						
西ドイツ	2	5	4		4	1			1	2		2						
イタリヤ	1	1	1				1						1				1	
東ドイツ	1	2								1	2							
カナダ	1			1														
オーストリア	1																	
イギリス		2						2										
スウェーデン		1	1								1	1						
スイス		1						1										
フィンランド		2									2							
日本・西ドイツ												1						
合 計	102	167	218	15	16	20	36	101	130	43	43	59	7			1	7	9

第一次石油危機は1973年、サンシャイン計画の発足は翌年の1974年である。当時の特許公開件数は1973年が4件、1974年が29件とわずかであった。しかし、サンシャイン計画による石炭エネルギー技術の開発が軌道にのると出願件数は急増し、1978年の公開件数は245件に達した。しかし、当時の特許内容を検討すると、アイデアの域を出ない考案も多数出願されている。その後、数年間は年間250件前後の特許が公開され、石炭の新技術開発は順調に進められたが、1983年度からは混合燃料部門の出願が急増し、最盛時には2年間にわたり年間約440件の特許が公開された。

しかし、公開件数はこの年を境にして急速に減少しはじめ、特に1986年以降液化、ガス化の技術開発が軌道にのり本格化したにも拘らず毎年20%以上減少し、開発のフェーズが壮年期に入ったことを示している。一方最近の公開件数は100件台に落ちているが、この傾向を裏付けるよう最近の特許は工業化を指向したもの、あるいは現在開発中、実証中の技術に関する出願が数多くみられ、質的には一段と高度なものになっている。なお、本図中の燃料組成物の分類は、石炭あるいは重質残渣油等を用いた特殊な燃料に関する出願である。

次に、最近3年間に公開された特許を出願者の国籍別に分類すると表1のようになる。表1では最近の公開件数の増加傾向を考慮し、ガス化発電を別項目とした。1990年以前はガス化部門に計上している。

出願件数の多い国は、アメリカ、オランダ、西

ドイツであるが、全体として海外からの出願は大幅な減少傾向を示している。

3. 石炭の液化に関する特許の動向

特許は基本的には個人が行った独自の発明であり、その人の関連出願分を除けばそれぞれの特許間には関連性のないのが原則である。しかし、出願した各社の間には社会的ニーズに応えるための共通した開発目標があり、大部分の特許はこの流れに沿って出願されている。従って結果的には相互に関連している出願となり、共通しているある開発目標を達成するため、各社の技術者がどのように考え、どのような手段で対応したのか、関連特許を調べれば一目瞭然である。

そこで、石炭の液化部門に出願された特許を技術的に分類し、出願企業別にその件数を調査した。技術分類は単位プロセスを基本としたが、出願件

表 2 1988年度における石炭液化公開特許分類

分類 会社名	総 件 数			単位プロセス及び機器・装置								要素技術・他	合計
	63年度	62年度	61年度	原料調製	予熱加圧	液化溶剤・触媒	液化反応	気固液分離	アップグレーディング	プロセス技術			
住友金属	6	7	10	2		1	1		2			6	
日本鋼管	4					1	1	1		1		4	
三菱重工	2	1	9									2	
日本コロール	2			1						1		2	
住友石炭鉱業	1	2										1	
川崎製鉄	1	2		1							1	1	
日立製作所	1	1	1		1							1	
日本鉄鋼連	1									1		1	
エクソン・R&E・C	1					1						1	
ルールコロール・AG	1								1			1	
合 計	20			4	1	3	3	1	2	2		20	

表3 1989年度における石炭液化公開特許分類

分類 会社名	総件数			単位プロセス及び機器・装置								合計
	平成1年度	昭和63年度	昭和62年度	原料調製	予熱加圧	液化溶剤触媒	液化反応	気固液分離	アップグレーディング	プロセス技術	要素技術・他	
住友金属I ホール・A G	5	6	7			2	3					5
神戸製鋼所・他	2	1					2			2		2
住友金属 釜山・エール	1	4				1	1				1	1
住友金属 F K	1						1			1		1
金並秀二	1						1				1	1
合計	16					3	8			3	2	16

数の多い溶剤、触媒分野は液化プロセスから独立させて別項目とした。会社の配列は出願件数順を基本としたが、関連特許で共同出願の場合は引続いてその下に記載した。

表2は1988年度における各社の出願状況および出願分野を示したものである。当該年度に公開された件数は20件で、前年度の41件に比較し半減している。なお、前々年度の公開件数は73件であるので、液化部門の出願数はここ数年急速な減少傾向が続いている。

昨年度に較べ件数が半減した原因は旭化成、日本褐炭液化からの大口出願がなされなかったことで、褐炭液化関係の技術開発が一段落したためであり、これにかわり本年度は瀝青炭液化の日本コールオイルより2件の出願がなされた。単位プロセス別では各分野ともほぼ均等に出願されており、石炭液化プラントはプロセス全体にわたって開発されつつあることがわかる。

表3は1989年度における公開特許の分類である。総件数は16件で前年度より20%減少した。出願分野は液化反応プロセスに集中しており、プラント開発の最終段階にみられる特許出願のパターンを示している。公開された16件の特許は非常に具体的な内容で、開発途上に遭遇したトラブル対策と思われるものも多かった。

表4は1990年度における公開特許の分類である。総件数は15件と前年度から横這いであり、出願分

表4 1990年度における石炭液化公開特許分類

分類 会社名	総件数			単位プロセス及び機器・装置								合計
	1990年	1989年	1988年	原料調製	予熱加圧	液化溶剤触媒	液化反応	気固液分離	アップグレーディング	プロセス技術	要素技術・他	
神戸製鋼所・他	3	1						2			1	3
住友金属	2	5	6					2				2
住友金属釜山	2	1						2				2
三井造船	2				1			1				2
大阪ガス	2					1		1				2
日本鋼管	1	1	4		1							1
三菱化成	1									1		1
アルバータ・リサーチ エクソン	1				1							1
合計	15			3	1	2	6	1	1	2		15

野も液化反応プロセス中心で、傾向としては前年度と同一であった。

4. 石炭液化に関する公開特許一覧

各年度に公開された石炭液化に関する主要特許を集め、技術分類と内容の要点を併記して一覧表を作成した。一覧表作成に当っては技術内容の関連性をみるため出願会社別に集約して表示した。

表5は1988年度における公開特許である。総件数は20件であるがその中から主要な17件を選んで示した。

住友金属はスラリーの調製方法と液化方法の名称に集約し、系統的に出願している。内容は混炭

表 5 1988年度における石炭液化関係特許

公開番号	出願人	名称	分類	内容
昭63-382	住友金属	石炭液化用スラリーの調整方法	スラリー調整	貯槽スラリーの外部回路循環、スラリー予熱
-183990	"	"	"	貯槽スラリーの外部回路循環、粗粒砕分け
-61083	"	石炭の液化方法	触媒供給法	触媒被毒防止のため反応器に直接供給
-238195	"	"	蒸留残渣溶媒	蒸留残渣より灰分を除去して再循環
-238196	"	"	液化プロセス	反応器内沈澱物を底部より除去
-238197	"	"	"	濃度による液化蒸留残渣性状の制御
-6084	日本鋼管	スラリー反応器	液化反応器	スラリーと水素向流接触、液面制御排出
-6085	"	高圧スラリー減圧装置	減圧方法	セラミックコアを用いた耐摩耗性減圧装置
-207891	"	石炭の液化方法	触媒	硫黄添加鉄系およびパイライト系触媒の交互作用
-93344	三菱重工	沸騰床型反応器	液化反応器	外部循環ポンプ型反応器
-132160	"	水素供与能検知方法	システム計測	溶媒にアントラセンを加えて水添し指標作成
-30589	日本コールオイル	メタノールを添加する石炭液化法	液化プロセス	石炭の1~50wt%のメタノール添加、水素節約
-112688	"	固形液化残渣添加添加の石炭液化法	スラリー調整	固形残渣を添加してスラリー安定性を調整
-285983	ルールコーレ	液相および触媒固定床水添液化法	プラント技術	要素機器のアレンジメント
-1450	エクソリサーチ	触媒製造法および水素化添加法	触媒調整	燐モリブデン酸液化触媒製造法
-207892	住友石炭	液化用石炭の前処理方法	前処理	水スラリー中にCO ₂ を吹き込み比重分離する
-230419	日立	立体ハイドロホイストの運転方法	スラリー加圧	ハイドロホイストのフロート比重調整法

により液化蒸留残渣の性状を制御し最適の溶剤を得る方法、残渣より灰分を除去し溶剤として再循環させる法、等溶剤の選択に注目しているほか、スラリーの安定化や予熱についても出願している。日本鋼管は触媒、反応器、減圧方法を出願しているが、特に減圧法ではセラミックコアを用いた耐摩耗性の減圧法を提案している。三菱重工は溶剤にアセトンを添加して水添試験を行い、液化に際しての水素供与能力の評価法を出願している。日本コールオイルは液化に際してメタノールを添加する新プロセスを出願している。

以上1988年度における液化関係の特許にみられたいくつかの特徴を紹介したが、これ以外の特許も工業化を前提としているものが多く、問題点を的確に指摘したうえで対策が考えられている。

表6は1989年度に公開された液化関係の特許一覧である。

住友金属は液化残渣の性状や生成油中のn-パラフィン測定して液化を制御する方法、反応器内のガス・液空塔速度を一定の関係で制御する液化法等を出願した。溶剤の使用法についても水素化と組合せ2件出願している。HRIは2段階液化法を申請した。神戸製鋼も重質油分を再度軽質

化する方法を出願している。

ルールコーレはコーキングによる管路の閉塞防止について、添加剤と高温水素による方法2件を出願した。フェーバーエールでも水素加熱によるスラリー予熱器内のコーキング防止策について出願した。さらに、日本鋼管でもスラリーのコーキングを予測する加圧コーキング試験器を出願している。

本年度の液化部門は触媒、液化反応等の分野よりもコーキング対策等の出願が多く、開発段階がかなり進んでいることを示している。なお、本年度の液化関係特許は量、質ともに低調であった。

表7は1990年度における石炭液化部門の公開特許一覧である。

神鋼・日本褐炭液化のグループから、1次水添残渣を脱灰、抽出処理した後2次水添する一連の液化油処理法が出願された。住友金属鉱山からはⅥ、Ⅶ族の溶剤水素化触媒、住友金属からは水素加圧下での高温スラリー予熱法が出願されている。日本鋼管からは石炭スラリーと溶剤スラリーを分離して、反応器に供給する方法が申請された。

以上、本年度の公開特許15件中14件を紹介したが、本年度も液化部門は量、質ともに低調であっ

表 6 1989年度における石炭液化関係特許

公開番号	出願人	特許名称	分類	特許内容
昭63-270792	住友金属	石炭液化方法	液化反応	オートクレープで液化残渣の性状を評価、残渣粘度を下げるよう混炭調整
-270793	"	"	"	混炭調整により液化油中のn-パラフィン生成量を抑制、液化効率を上げる
平1-210495	"	"	"	反応器内におけるガス空塔速度と液空塔速度とを一定の関係式に従い制御
-213397	"	"	溶媒回収	軽質分を除いた液化油を特定の条件下で水素化し、反応器に戻して液化溶媒に使用
-213398	"	"	"	上記と同一条件で水素化した溶媒を常圧蒸留し、塔底油全量を液化溶媒に使用
-36686	ルールコーレ	炭素を含有する炭人物質に水素添加する方法	プロセス技術	Na ₂ Sを生成油中に分散させ、Na塩を形成させて管路の閉塞を防止
-172491	"	"	"	スラリー予熱に高温水素を用いたり、間接熱交換を採用し、局部過熱を防ぎコーキングを防止
-161087	H R I	石炭の接触二段水素化方法	液化反応	第一沸騰床の水素化に次ぎ、第二沸騰床で苛酷な水素分解を行い液化油収率向上を計る
-161088	"	"	"	上記と同じ液化で、第一床より触媒を抜き出して第二床で使用、使用触媒量を低減
-68683	神鋼・三菱化成・ 出光・アジア石油・ 日本篤炭液化	石炭の液化方法	"	液化油重質分を特定の条件を満たすよう成分調整、再度熱処理して軽質化
-87686	工業技術院	複合系触媒を用いる 石炭液化反応	液化触媒	硫化鉄-硫酸塩、硫酸根担持酸化鉄複合触媒
平1-111447	住友金属鉱山	石炭液化溶剤の 水素化処理用触媒	"	γ -アルミナとSiO ₂ /Al ₂ O ₃ ペンタシル型ゼオライト担体にVI、VII族金属を担持
-207386	フェルン・I・M ウヰルソックス	液状の炭素含有炭入原料の 水素化方法	プラント技術	高温分離器廃熱で原料スラリーを予熱、別に水素を過熱供給して予熱器のコーキングを防止
-236296	金並秀二	炭酸ガスを石油に化成する 方法	プロセス技術	CO ₂ を地下に圧送、地熱、地圧、地殻物質を利用して石油に転換
-266839	日本鋼管	オートクレープ	システム技術	外部加熱、ヒーター内蔵テストセクションを備えた石炭スラリーの加圧コーキング試験器
-500124	G F K	液状残渣フラクションを 統一的にコークス化する方法	プロセス技術	液化残渣を水素存在下で加部加圧でコークス化、ガス及び液状油を回収

表 7 1990年度における石炭液化関係特許

公開番号	出願人	特許名称	分類	特許内容
平1-304181	神鋼・三菱化成・ 出光・フジ石油 日本褐炭液化	石炭の液化方法	フッパクレーション	1次水添残渣から重質液化物を抽出、2次水添して軟質化
304182	〃	〃	〃	1次水添残渣を脱灰した後、重質油分を抽出し2次水添
平2-99595	〃	〃	プロセス	1次水添残渣を脱灰、多少の灰分を含む重質油に水溶液を混合、灰分を水スラリーとして除去
平2-107333	住友金属鉱山	石炭液化循環溶剤 の水素化処理用触媒	触媒	VI族及びVII族の金属酸化物を15～20%、3～10%含む溶剤水素化触媒
122832	〃	〃	〃	VI族及びVII族化合物を担持したゼライト系溶剤水素化触媒
8294	住友金属工業	石炭の液化方法	反応条件	反応塔に供給するスラリーを水素加圧下で反応温度より高温に予熱
99594	〃	〃	反応装置	直列接続の反応塔群よりなる液化装置、後段の反応塔ほど塔長・塔径比を小さくする
平1-279990	大阪ガス	石炭からの芳香族 化合物の製造方法	反応・予熱	石炭と水素供与性触媒スラリーをクローブ・アール触媒下550℃で水素化処理
平2-60992	〃	ピッチの製造方法	反応・前処理	微粉砕炭を600～1000℃で水添分解し、生成重質油を340℃で熱処理
142892	三井造船	石炭の水添液化方 法	反応・溶剤	液化混合物より溶剤を回収、溶剤中のn-Hラフィンを改質し溶剤に戻す
175788	〃	石炭の液化方法	原料調製	石炭・溶剤スラリーにn-ヘキサン油と水を加えて攪拌凝集炭を造り硫化鉄を付着させて液化原料とする
平2-16191	三菱化成	石炭の急速熱分解 装置	プロセス	赤熱コークスに微粉を接触させター油を高収率で製造
103284	日本鋼管	石炭液化方法	原料調製	石炭・溶剤スラリーと触媒・溶剤スラリーを別々に液化反応器に供給
4894	アパチ・タリリーチ	凝集された亜靛青 炭から改良された 固体燃料を得る方 法	原料調製	フリッジング液体を使用して固液分離を簡易化
222490	エクソン	コンビネーション・コーク 及び水素化転化法	フッパクレーション	コーク・オームと重質炭化水素スラリーの水素化プロセス

た。

5. 結 言

最近の3年間に公開された石炭液化関係の特許を調査し報告した。特許は技術開発のフェーズによりその質と量が大きく変化し、サンシャイン計画発足初期のアイデア特許大量出願時代から、現在は現実的な地味な特許の寡少出願時代になっている。しかし、並行して進められている石炭液化の技術開発は順調に進展しており、現状の特許出願状態が工業化を指向した本来の姿であるように思う。

特許上からみた石炭液化は、技術的には壮年期

に入っており、今後は工業化の検討をしなければならないが、そのためには経済性の問題を解決しなければならない。従って今までの実証技術中心の出願にかわり、経済性を高めるための特許が出願されるべきで、この山を越えて初めて工業化の展望が開けてくる。関係各位の工夫、発明を期待してやまない。

文 献

- 1) 特許情報調査研究（石炭の液化・ガス化）
昭和63年度サンシャイン計画委託調査研究
成果報告書
日本産業技術振興協会（平成元年3月）

2) 特許情報調査研究(石炭の液化・ガス化)
平成元年度サンシャイン計画委託調査研究
成果報告書
日本産業技術振興協会(平成2年3月)

3) 特許情報調査研究(石炭の液化・ガス化)
平成2年度サンシャイン計画委託調査研究
成果報告書
日本産業技術振興協会(平成3年3月)

The Investigation Study for the Japanese Patents on the Coal liquefaction Technology

Mizuho HIRATO

(Tokyo University of Agriculture and Technology)

SYNOPSIS : — This is the report of the investigation for the Japanese patents on the coal liquefaction technology from 1988 to 1990.

日本コークス標準試料

コークス標準試料を本会で作製、ご希望の方に頒布致しております。この標準試料は分析ならびにコークス取引関係者にとって必需のものであり、標準値表参考にお役に立ていただきたく、ご購入方お勧め致します。

試料種類(約80g入、標準値表付) $\left\{ \begin{array}{l} \text{IV. 低 硫 黄 分} \\ \text{V. 中 硫 黄 分} \\ \text{VI. 高 硫 黄 分} \end{array} \right.$

販売価格 IV. V. VI. 各1瓶 6,000円(送料別)

申 込 先

〒101 東京都千代田区外神田6-5-4(偕楽ビル)

社団法人 燃 料 協 会 TEL 03(3834) 6456~8