

「高効率な石油精製技術の基礎となる石油の構造分
析・反応解析等に係る研究開発委託・補助事業」

研究開発プロジェクト

終了時評価

評価用資料

2021年11月19日

経済産業省 資源エネルギー庁

資源・燃料部 石油精製備蓄課

(事業の目的等)

事業名	高効率な石油精製技術の基礎となる石油の構造分析・反応解析等に係る研究開発委託・補助事業						
上位施策名	科学技術・イノベーション						
担当課室	石油精製備蓄課						
事業の目的	省エネの進展等による国内石油需要の減少、アジア新興国における大型・輸出型製油所の台頭による国際競争の激化など、我が国石油精製業を取り巻く事業環境は厳しくなっている。こうした中、将来にわたり石油の安定供給を確保していくためには、コストの安い原油等から高付加価値の製品を生産すること（石油のノーブル・ユース）や精製設備の稼働を長期間安定させること（稼働信頼性の向上）など石油製品を効率的に生産する能力を高めることで、原油の有効利用や調達原油の多角化（中東依存度の低減）を図る必要がある。 そのために、従来、組成が未解明のために処理が困難であった重質油について、分子レベルで組成を科学的に解明し、石油精製プロセスにおける化学反応を解析・予測するための技術（ペトロリオミクス技術）を活用し、付加価値の高い石油製品や石油化学製品を効率的に生産する基盤的な研究開発を推進する。						
類 型	複数課題プログラム / 研究開発課題（プロジェクト） / 研究資金制度						
実施時期	2016 年度～2020 年度（5 年間）		会計区分	一般会計 / エネルギー対策会計			
評価時期	事前評価：2015 年度、中間評価：2018 年度、終了時評価：2021 年度						
実施形態	国 → JPEC（委託） 国 → JPEC（補助 実用化 2/3、実証 1/2） → 出光、ENEOS						
プロジェクトリーダー	【委託】一般財団法人石油エネルギー技術センター 技術企画部 秋本 淳 【補助】各補助事業者と事業連携推進会議で連携						
執行額（百万円）	2016 年度	2017 年度	2018 年度	2019 年度	2020 年度	総執行額	総予算額
	1,215	1,025	929	668	670	4,508	4,610

1. 本事業の政策的位置付け/背景

日本は石油資源に乏しくその大宗を海外からの輸入に頼るため、国内外の状況の変化に大きな影響を受けやすい。特に原油の90%近くを中東から輸入しており、エネルギーセキュリティの観点から中東依存度を下げることが課題になっている。

一方で、省エネの進展等による国内石油需要の減少、アジア新興国における大型・輸出型製油所の台頭による国際競争の激化など、我が国石油精製業を取り巻く事業環境は厳しくなっている。将来にわたり石油の安定供給を確保していくためには、コストの安い原油等から高付加価値の製品を生産すること（石油のノーブル・ユース）や精製設備の稼働を長期間安定させること（稼働信頼性の向上）などにより、石油製品を効率的に生産する能力を高める必要がある。

以上のように厳しい事業環境の中で石油エネルギーを安定供給するためには、原油の有効利用や調達原油の多角化（中東依存度の低減）を進め競争力を強化することが求められている。

そのために、従来、組成が未解明のために処理が困難であった重質油について、組成を分子レベルで科学的に解明し、石油精製プロセスにおける化学反応を解析・予測するための技術（ペトロリオミクス技術）を活用し、付加価値の高い石油製品や石油化学製品を効率的に生産する基盤的な研究開発を推進する。

2. 当省（国）が実施することの必要性

本事業では、製油所の生産性を高める上で有効な取組である石油のノーブル・ユース

（コストの安い原油等から高付加価値の製品を生産すること）、稼働信頼性の向上（精製設備の稼働を長期間安定させること）を実現するため、化学製品を効率的に生産する技術や、低廉な重質原油を用いて石油製品を効率的かつ安定的に生産する技術のうち、大きな効果が見込めるものの技術的な難易度が高い技術の開発を行う。本事業を通じて確立される新たな生産手段が国内の各製油所に横展開されることにより、原油の有効利用や調達原油の多角化（中東依存度の低減）が可能となり、石油の安定供給が図られる。

本事業は、原油の有効利用や調達原油の多角化につながるため、石油の安定供給の観点から、国として推進することが望ましい。本事業で開発する技術は、国内石油精製業の技術基盤の底上げを図るものであるが、開発の技術的難易度が高いために投資回収リスクが高く、また、原油の多角化、重質油分解能力の向上は、民間企業にとっては、原油市場の動向次第（軽質油が安価な場合など）では、経済性を確保出来ないため、自発的な投資が進みにくい。このため、国の助成措置により企業の取組を促す必要がある。

3. 国内外の類似・競合する研究開発等の状況

国内ではこの技術開発で基盤技術を協力して確立し、各社で技術適用を進めている。そのためこれ以外に類似・競合する技術はない。

一方、海外では ExxonMobile は、ペトロリオミクスと同様の手法を開発し、特許でも競合となることがある。また TOTA、ENI、サウジアラムコ、ADNOC、シノペック、PTT などペトロリオミクス技術に興味を示している会社は多数あり、見学会や情報交換など進めている。また PetroPhase では石油・重質油の物性に関する国際学会が開かれており、世界的にも重質留分の詳細分析とその活用については注目されている。(図3-1)

このように特許や論文または意見交換などを進めた中で考えると、日本のペトロリオミクス技術については、世界的に見ても技術優位にあると考えている。

JPECペトロリオミクス技術は、海外の研究機関等から連携等を打診されている。

EU/USA	中東	アジア
CONCAWE/FuelEurope JPECとは年1回以上の会合を行い、ペトロは毎回注目を受けている。	サウジアラムコ (Saudi) 2018/11の日本-サウジ合同セミナー(石油学会主催)でのJPECペトロの紹介に興味を持ち、2019/1にR&Dセンター3名が訪問。共同研究の可能性を言及している。 2019/9、日本でサウジアラムコの石油精製技術シンポジウム開催実施(JCCP)。	SINOPEC (中国) JPECは日中韓シンポを通じ、ペトロを含めて毎年情報交換を実施。 Molecular-level Smart Refineryの概念を掲げ、技術開発を実施中。 中国石油大学(北京)で、「分子エンジニアリングセンター」の開所式挙行(2018/9)。教授10名、総勢100名超で体制はJPECペトロ研を凌駕。
ExxonMobil “Molecular Management”というペトロ的手法で先行。不定期で情報交換実施。	2020/2、日本-サウジ合同セミナー(石油学会主催、コロナのためWeb開催)で技術紹介実施。	PTT (タイ) JPECとの技術交流会を開催。IoT活用に積極的であり、ペトロ技術にも興味を示す。
TOTAL (フランス) 2018/9、2019/6にペトロ研見学。 C2MC (Complex Matrices Molecular Characterization) というコンソーシアム。 JPECは反応解析、凝集制御などでリード。	ADNOC (UAE) JCCP海外技術協力事業において、ペトロ技術に興味を示す。 ペトロ研究室の見学は複数回実施済み。	
ENI (イタリア) 2018/10にJPECにて、ENI社技術セミナーを実施(参加者約50名)。 スラリー床の残油水素化分解プロセス(EST)を自社開発。ペトロの分子反応モデル解析に着目し、興味を示す。		
PetroPhase 2019 (国際会議) 石油・重質油物性を専門に取り扱う唯一の国際技術会議。第20回を、日本で初めて開催(2019/6@金沢)。世界20か国から209名が参加。JPECペトロ関連で計8件発表(内2件はペトロ研)。		

図3-1 国内外の類似・競合する研究開発等の状況

4. 研究開発の内容

(1) 研究開発の全体構成

表 4－1 研究開発の全体構成

研究開発項目		実施者
①高効率な石油精製技術の基礎となる石油の構造分析・反応解析等に係る研究開発（委託）	(a) 非在来型原油成分分析技術開発	J P E C
	(b) RDS(直接脱硫装置)及びRFCC(残油接触分解装置)の全体最適化技術開発	J P E C
	(c) アスファルテン凝集制御技術開発	J P E C
	(d)革新的石油精製技術のシーズ発掘	【第1期】 ・ 東京大学・東北大学 ・ 東京工業大学・静岡大学 ・ 鳥取大学・北九州市立大学 【第2期】 ・ 東京工業大学・早稲田大学 ・ 信州大学・鳥取大学 ・ 北九州市立大学
②高効率な石油精製技術に係る研究開発支援事業（補助）	(a) 1301 石油精製実用化技術開発事業 (H28 年度～H30 年度) 「ブタンの脱水素によるブタジエン製造技術の開発」	ENEOS 株式会社
	(b) 1302 石油精製実用化技術開発事業 (H28 年度～H30 年度) 「先進的膜分離による高付加価値品回収技術開発」	ENEOS 株式会社
	(c) 1303 石油精製実証技術開発事業 (H28 年度～R2 年度) 「RDS／RFCC全体最適処理技術開発」	出光興産株式会社
	(d) 1304 石油精製実証技術開発事業 (H28 年度～H30 年度) 「劣質原油処理における腐食機構の解明と対策」	出光興産株式会社
	(e) 1305 石油精製実証技術開発事業 (H28 年度～R2 年度) 「非在来型原油および残渣油の2次装置反応性解析」	ENEOS 株式会社
	(f) 1306 石油精製実証技術開発事業 (H28 年度～R2 年度) 「重質残渣油のRFCC原料化のためのRDS触媒システム開発」	ENEOS 株式会社
	(g) 1307 石油精製実証技術開発事業 (H28 年度～H30 年度) 「重質油処理における機器閉塞機構解明及び対策技術開発」	ENEOS 株式会社

(2) 各研究開発項目の内容

① ペトロリオミクス委託研究開発 (JPEG)

①-1 非在来型原油成分分析技術開発

これまで取り扱い実績のない非在来型原油等の未利用重質原油を処理するためには、得率が多い残渣油から分留される減圧軽油留分 (VG0) や常圧残渣 (AR) 等の特性を分子レベルで理解し原油の価値を評価することが重要だが、従来技術のみでは困難であり新たな評価技術を確立する必要がある。

そこで、本事業では、まず重質原油に多く含まれる高沸点留分を詳細に評価するための高真空・内部乾留型減圧蒸留法を確立した上で、重質成分の分子構造から反応性を評価する技術を確立することを目指した。さらに、原油混合時の特性に関する評価法を構築することで、未知の超重質原油を実際に処理する上で有効に活用し得る評価指標を提供することを目指して技術開発を行った。

(図4-1)

未利用原油(非在来型原油、在来型超重質油原油)の重質成分を詳細に解析し、稼働信頼性向上および石油のノーブルユースに資するアベイビリティの評価指標を構築・提供する

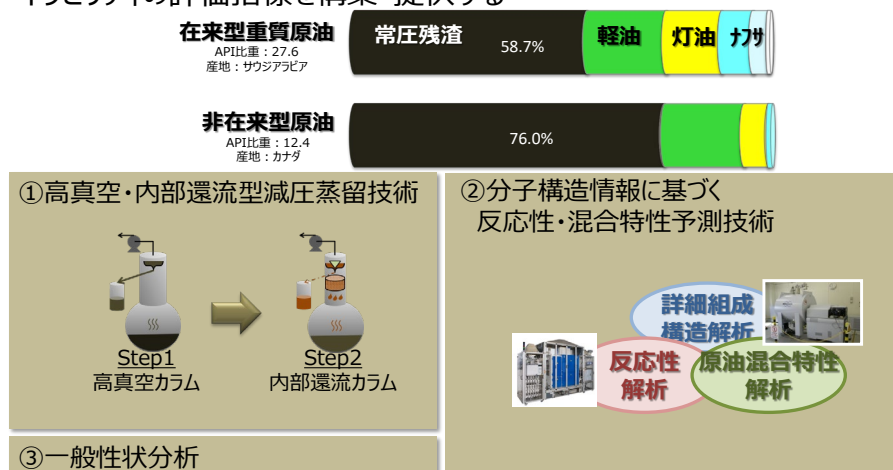


図4-1 非在来型原油成分分析技術開発の狙いと開発項目

①-2 RDS (直接脱硫装置) 及びRFCC (残油接触分解装置) の全体最適化技術開発

残渣油得率の低減及び軽質留分得率の向上のために重質油処理装置のプロセスの最適化が求められている。RDS 装置及び RFCC、FCC 装置は我が国において最も多く装備されている重質油処理装置であり、当該装置の残渣油得率低減に繋がる技術開発は非常に重要である。そこで、RDS 及び FCC/RFCC 装置の最適運転を行うために以下の4項目を対象とし技術開発を行った (図4-2)

- 1) RFCC 得率予測モデルの開発
- 2) RDS 触媒設計技術の開発
- 3) RDS 偏流解析モデルの開発
- 4) RDS 触媒劣化予測モデルの開発

RDS/RFCCプロセスにより生み出される価値を最大化するための技術を構築・提供する。

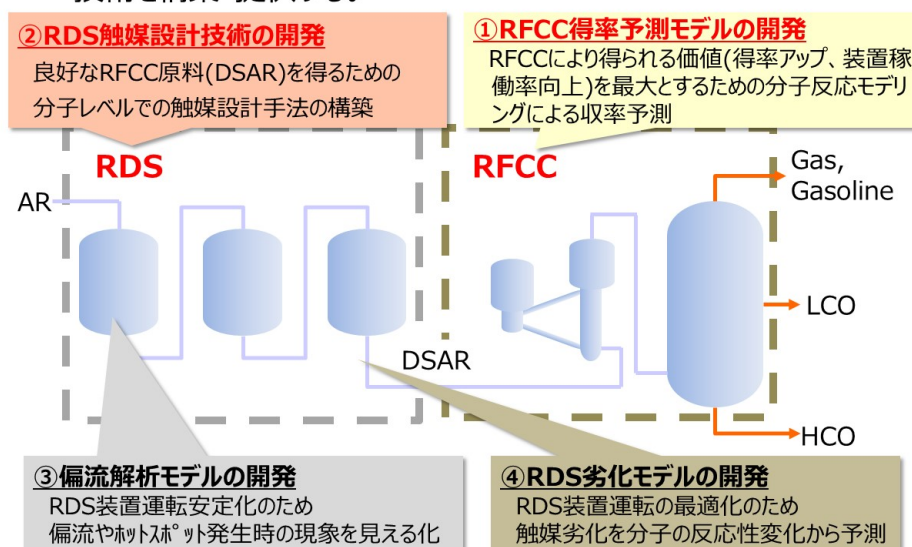


図 4 - 2 RDS/RFCC 全体最適化技術開発

①-3 アスファルテン凝集制御技術開発

アスファルテン (As) は非常に凝集しやすく、石油産業における原油生産から輸送・備蓄、さらに精製の各部門において、管の閉塞や触媒の失活といった様々な問題の主原因の一つとなっている。As の凝集・析出を適切に制御することが極めて重要であるが、その挙動は非常に複雑であるため、これまではそれを定量的に予測し制御する方法が確立されていなかった。そこで、2011 年から 2015 年にかけて実施した「重質油等高度対応処理技術開発事業」において、重質油成分の溶解・凝集・析出挙動をハンセン溶解度パラメータ (HSP) を用いて定量的に予測できる多成分系の凝集モデル (MCAM: Multi Components Aggregation Model) を開発した。

そこで、本事業では、「重質油等高度対応処理技術開発事業」で開発した MCAM の石油精製プロセスに多い高温・高圧装置への適用についての検証を行った。また、As 凝集挙動を解析する際には、縮合アロマの積層だけでなく、極性官能基等の分子中の部分構造の相互作用を考慮する必要がある。そこで、これら部分構造の影響等を考察すると共に、MCAM 検証結果と併せて MCAM の改良に向けた課題抽出を行った。

①-4 革新的石油精製技術のシーズ発掘

エネルギー安定供給を継続するために、我が国製油所の国際競争力を強化する新しい技術の開発が必要不可欠である。しかし、経営環境の厳しさが増す中、開発リスクの高いテーマに対して石油業界は慎重にならざるを得ず、石油精製にかかわる革新的な技術開発が勢いをなくし、衰退の一途をたどることが懸念される。そこで、「石油のノーブルユース」および「稼働信頼性の向上」をターゲットとした新規技術開発シーズを石油分野のみならず他分野からも発掘するために、国内に研究拠点を持つ研究機関および企業に所属する満 40 歳未満を対象者、

公募形式にて広くテーマ募集を行い、産学の委員からなる採択・評価委員会にて採否を決定した。

研究テーマは、第1期、第2期募集を実施し、第1期は平成28-30年度の最大3年間の研究を行い、第2期は平成31-令和2年度の2年間の研究を行った。

第1期に採択されたテーマは表4-2に示す6テーマである。第2期に採択されたテーマは表4-3に示す5テーマである。

採択テーマは、採択・評価委員会にて進捗管理や翌年度の採否を決定した。「採択・評価会議」においては、テーマの諾否のみではなく、実際に製油所に適用された事を想定した場合の技術面での指導・助言を委員より行い、効率的な研究開発を促した。

また、石油業界との交流についての取り組みについては、本事業の当初もくろみが、若手や異分野研究者を採択し、将来の石油人材育成を試みる予定であった。実際の採択者には元から石油にかかわる方も含まれていたが、石油側の知識サポートが必要と考え、以下サポートを実施した。

当センター依頼で石油学会のもとに「革新的石油精製技術シーズ発掘事業支援WG」を立上げ、各採択者に石油会社やエンジニア会社の人材を各1名以上付けて指導・助言等を行った。具体的活動は、各テーマの石油精製における位置づけ、研究の方向性、最終目標を明確にして事業化の視点から研究方向性の助言を実施した。石油サンプル、触媒等の提供や石油組成、プロセス・製品需給動向等の情報提供を行った（経済性評価をも含む）。また、製油所、触媒研究所の施設見学も実施した。JPECでもICR-MS等の測定から研究支援を実施した。

表4-2 第1期（平成28-30年度）採択テーマ

提案テーマ	分野	提案者	研究概要
液体金属触媒による未利用オフガス化学転換	触媒	東京工業大学 萩原助教 (現在:埼玉大;准教)	メタン、エタン等の混合ガスを低級オレフィンと芳香族化合物に転換する触媒の開発
硫化物触媒の格子 S^{2-} のレドックス機能を活用した低級アルカンの選択脱水素プロセス創生	触媒	静岡大学 渡部助教 (現在:准教)	製油所内のプロパン、ブタンをプロピレン、ブタジエンに転換する硫化物触媒の開発
LPガスの脱水素によるブタジエン合成のためのゼオライト触媒の開発	触媒	北九州市立大学 今井准教	LPガスを低級オレフィンとブタジエンに転換する脱水素用ゼオライト触媒を開発する
減圧軽油(VGO)の多面的高度利用プロセスの開発	触媒	鳥取大学 菅沼助教 (現在:講師)	減圧軽油(VGO)を、直鎖アルカンとアルキルベンゼンに転換する部分核水添、開環触媒システムを開発する
簡易型プロセス監視・制御シミュレータを用いたノンテクニカルスキル実践訓練手法の開発	安全	東北大学 狩川准教	航空、原子力、海運、医療分野で注目されているヒューマン・ファクターという概念を製油所の業務に適用し、ヒューマンエラー防止に必要なスキル要素の訓練手法を開発し、有効性を評価する。
石油精製工場におけるビッグデータを活用した安全かつ効率的なプラント管理手法の確立	プロセス	東京大学 金子助教	精製所の運転データ等のビッグデータを収取して、製品性状を推定するソフトセンサーを開発し、このソフトセンサー技術を活用した異常検知モデルも構築する。(H29年度継続中止、明治大学に異動)

表 4－3 第 2 期（平成 31-令和 2 年度）採択テーマ

提案テーマ	分野	提案者	研究概要
触媒活性点を制御した金属担持ゼオライト触媒によるナフサ接触分解の超低温化	触媒	東京工業大学	ナフサ留分からプロピレンやC4オレフィンを450℃以下で選択合成する新規触媒プロセス開発
		藤埴助教	
電場触媒反応を用いた低温高選択的ブタン脱水素プロセスの開発	触媒	早稲田大学	触媒層に微弱な電場を印加した電場触媒反応をn-ブタン脱水素に適用し、選択的に C4 オレフィン類を製造する新規触媒プロセス開発
		比護研究員講師	
成分間での水素授受を考慮したRFCC反応モデルの構築	触媒	信州大学	多環芳香族の分解に対する水素移行反応モデルを構築するとともに、触媒の種類による反応機構を検討
	(プロセス)	嶋田講師	
減圧軽油(VGO)の革新的変換プロセスの開発	触媒	鳥取大学	VGO中の多環芳香族の脱アルキル化や脱水素から長鎖アルカンとやアルキルベンゼンを生成するプロセス開発
		菅沼講師	
金属複合体を包含するゼオライト触媒によるアルカンから芳香族炭化水素への選択的変換	触媒	北九州市立大学	金属元素を単分散または 金属複合体のゼオライト触媒を用いたアルカンから芳香族(ベンゼン、トルエン、キシレン)を 製造するプロセス開発
		今井准教授	

② RDS/RFCC 全体最適処理技術開発（出光）

②－１ 背景と目的

背景

日本国内の製油所は、原料原油のほぼ全量の中東中心の産油国からの輸入に頼っていることに加え、国内の消費はガソリン等に代表されるクリーン液体燃料（主に油送用）とナフサ・アロマ（BTX）等から派生する化成品用途である特徴を有する。そのため、国内製油所の多くは国際競争力を維持するため、早くから重油からの高付加価値品への転換技術（重油アップグレーディング）導入に務めてきた。その中でも重油直接脱硫（RDS）装置と重油流動接触分解（RFCC）装置との組合せを採用している割合が世界的にも高く、それ故 RDS+RFCC 組合せシステムの最大活用・最大効率運転は石油の更なるノーブル・ユースに直結し、我が国石油精製技術の国際競争力アップのため強く望まれている。

しかしながら、RDS 原料である常圧残油（AR）をさらに重質化することや、処理量アップを狙った高負荷運転等、更なる効率運転のためには、RDS 装置の特に前段（ガード）部でのスケール詰まり等からの偏流に起因する触媒寿命低下、の原因を解明し根本からの対策を施すことにより、新たな設備を追加することなしに長期連続運転を可能にすることが必須である。

一方で、RDS+RFCC 組合せシステムのポテンシャルを最大限に引き出すためには、超多成分+巨大分子から構成される重油を分子レベルで、RDS を経て RFCC にて分解され有用な軽油、ガソリンや化成品原料に変換する過程を解明し、コーキングもしくはガス等への望まれない反応を避けることが望まれている。昨今の JPEC 主導によるいわゆるペトロリオミクス技術開発により、重油を含む複雑反応の分子レベルでの解析技術展開が現実的になってきたこの機会を活かし、分子レベルでの反応メカニズム把握に立脚した RDS+RFCC 組合せシステムで全体最適運転技術開発を行う。

目的

- a) 重油直接脱硫（RDS）装置にて、更なる重質処理運転促進を狙い、RDS 装置前段部（ガード）での偏流を大きく低減する技術開発を行う。
- b) 重油直接脱硫（RDS）装置と重油流動接触分解（RFCC）装置の組合せにおいて、常圧残油（AR）を原料にした際の RFCC によるガソリンや軽油留分等、高付加価値燃料油への転換効率向上を最大限に発揮可能な技術開発を行う。

内容

上記目的の実現に向けて以下の３項目の技術開発を行う。（表４－４：RDS-RFCC 全体最適処理技術開発）

- a) CFD 技術活用に基づく反応温度偏差改善のための触媒グレーディング技術開発
- b) RFCC 分解向上のための RDS 触媒システム技術開発
- c) 最適 DSAR 性状に対応した RFCC 反応制御技術の開発

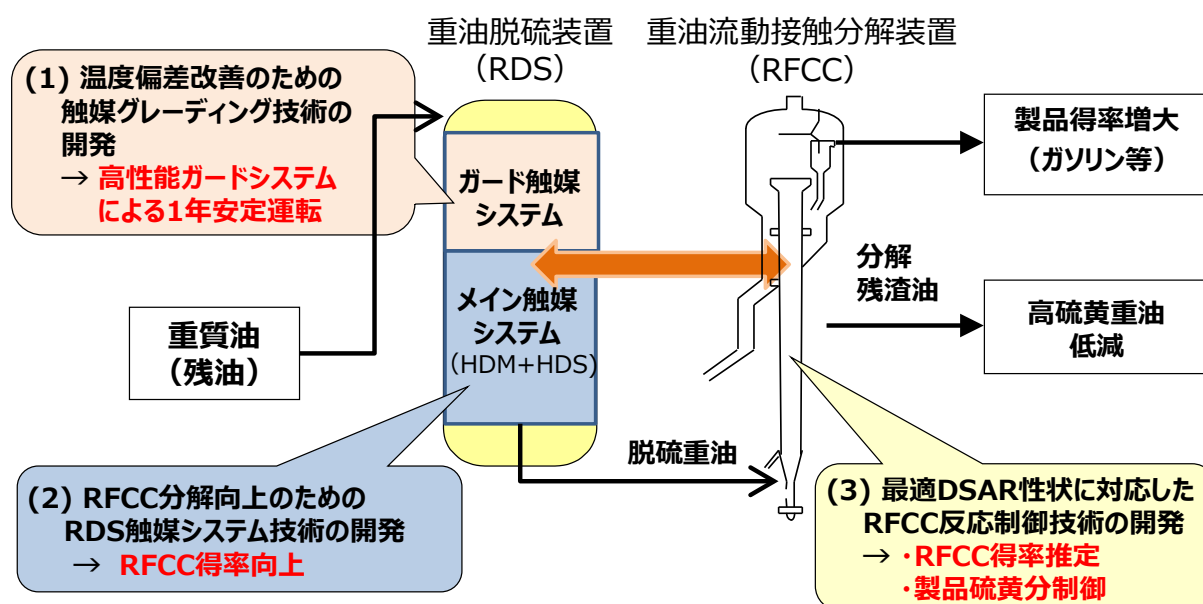


図 4 - 3 RDS-RFCC 全体最適処理技術開発

それぞれの項目について、下記の年度目標に従って着実に研究開発を推進し、最終目標の達成を目指す。

表 4 - 4 RDS-RFCC 全体最適処理技術開発

実施内容 ／ 年度	a) 温度偏差改善のための 触媒グレーディング技術開発	b) RFCC 分解向上のための RDF 触媒システム技術開発	c) 最適 DSAR 性状に対応した RFCC 反応制御技術の開発
H28	実際の触媒形状を考慮した触媒 グレーディング評価技術 (MICRO- SIM) の開発に着手	ベンチ運転条件探索等により 触媒システム + 運転条件の影響把握	特性の異なるDSARを用いた RFCC分解性への影響把握
H29	MICRO-SIMを適用レベルで開発。 偏流時の流動状態予測技術着手	RFCC分解向上に資するRDS触媒 システムを探索し、有望システムを見出す	各種DSARのペトリタクス技術による 詳細解析とRFCC分解反応性の相 関性把握
H30	開発SIM (MICRO + MACRO) を 実機適用レベルで活用。 新規ガードシステム提案	実機に適用できるレベルでの新規 RDS触媒システムの適用判断	最適DSARに適合した有望 RFCC触媒選定 (製品中硫黄分布制御考慮)
H31	1. 開発SIM技術に基づく新規触媒グレーディング技術 (RDS装置ガード部) ならびに新規RDS触媒システムによる実機RDS実証運転実施 2. 開発技術適用により実機RFCC運転にて分解向上性を把握し、開発評価技術の妥当性を評価		
H32	実機実証運転実績を踏まえた評価と 再チューニングにより開発SIMを完成	1. 実機RDS実証運転結果の実績評価 2. 実機RFCC実証運転の実績評価と開発評価技術の完成度向上 3. 必要に応じ更なる改良の検討	
最終目標	実機RDS装置運転において、ガード 触媒層水平温度差 (ΔT) 20℃以下 維持を可能とし、1年間連続運転 を達成する。	実機RDS + RFCC装置運転にて常圧残油 (AR) を原料にした際のRFCC による高付加価値燃料油への転換効率向上を可能にする技術開発を行う。 実機RFCCにて有効成分液収率0.3vol%以上 (脱硫重油・DSARを 100%通油換算)	

②-2 開発結果

②-2-1 CFD 技術活用に基づく反応温度偏差改善のための触媒グレーディング技術開発

目的に応じた2種類のCFDモデルを開発した。触媒形状と流動の関係を解明し、触媒グレーディングを評価するためのミクロSIMと、反応塔全体の流動状態・反応状態を予測し、固化・偏流の時間的な進展を評価するためのマクロSIMである。ミクロSIMでは、粒子法（MPS）と離散要素法（DEM）を組み合わせ、触媒形状まで精緻に表現できるモデルを開発した。マクロSIMでは、流体体積法（VOF）とDEMのカップリングにより、触媒層全体の流動状態・温度分布・圧力分布を表現できるモデルを開発した。

ミクロSIMの健全性を検証するため、ミズーリ工科大学にて γ 線CT実験を行い、微粒子補足挙動を実験的に明らかにした。また、ミクロSIMを用いた解析により、流動やスケール補正に対する触媒形状（キャビティー型等の新規形状も含む）の影響が調べられることを確認した（図4-4：現行型およびキャビティー型グレーディングモデル）。

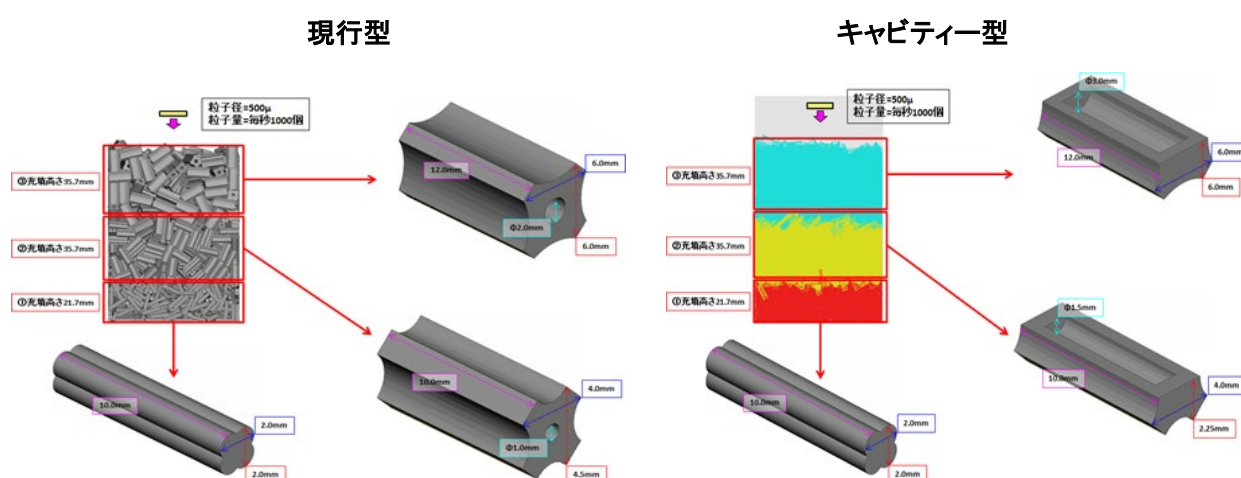


図4-4 現行型およびキャビティー型グレーディングモデル

このミクロSIMを活用して選定したガード触媒システムを含むRDS実装置を、 ΔT 、 ΔP とも問題無く1年間安定運転できた。また、マクロSIMを用いた解析により、触媒層内の固化・偏流・ホットスポットの状況と運転パフォーマンスを対応付けた。

②-2-2 RFCC得率を極大にするRDS触媒システム技術

ベンチ実験によりシビアに水添したDSARがRFCCの分解性に優れていることを見出した。これを踏まえて、分解に寄与する軽質分を深脱し、シビアな反応で触媒劣化を促進するボトムはスルーする新たな触媒コンセプトを考案し、そのコンセプトに基づき、RFCCの分解性とRDSの劣化抑制を両立できる触媒システムを構築した。

その触媒システムを実装置に充填して運転し、全期間を通じて運転データは良好なパフォーマンスを示すことを確認した。実機運転データと併せて、ベンチ原料油・生成油のペトロリオミクス解析により、開発コンセプトの実現性と優位性を確認した。（図4-5：軽質分深脱によるRFCC分解性の向上（上）と図4-6：ボトムスルーによる触媒劣化の抑制（下））

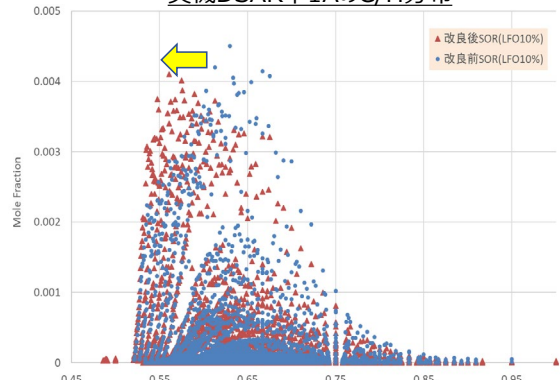
RFCC得率に対するRDS触媒改良の効果

		RDS触媒システム改良※2	
分解ガス	vol.%※1	Base	-0.1
C3	vol.%	Base	-0.3
C4	vol.%	Base	+0.7
分解ガソリン	vol.%	Base	+1.1
分解軽油	vol.%	Base	-0.7
分解残油	vol.%	Base	-0.4
コーク	wt.%	Base	-0.1
トータルゲイン	vol.%	Base	+0.3

※1 原油換算、※2 寿命に余裕が出た分、シビアにRDSを運転

RDS触媒システムを改良し運転条件をシビアにすることにより、分解ガソリン得率が上昇し、分解残油、コーク得率は減少した。その結果、トータルでゲインが0.3 vol.%向上した。

実機DSAR中1AのC/H分布

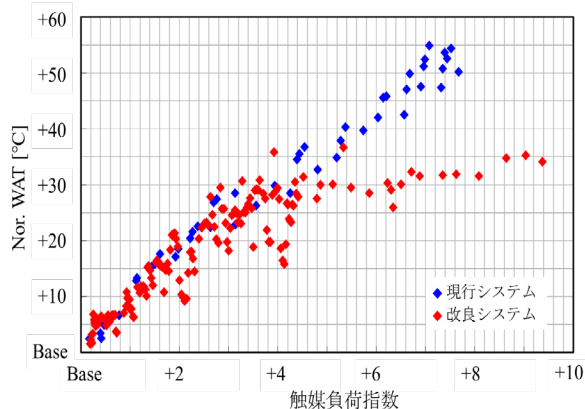


RFCCでの分解に大きく寄与する軽質分（1A）はC/H（炭素/水素比）分布が低い方にシフトしており、RDSでより水素化されている。

平均C/H : 0.60（現行）→0.59（改良）

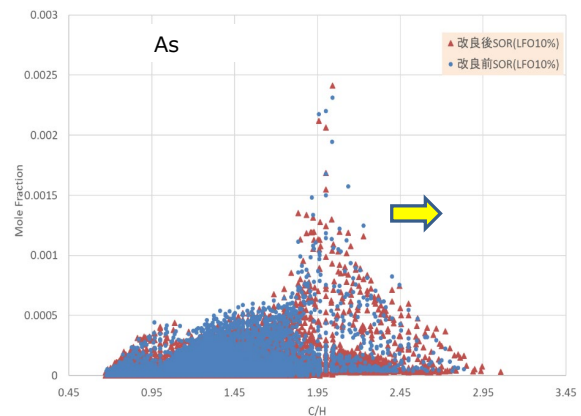
図4-5 軽質分深脱によるRFCC分解性の向上

実機RDSシステムのWATの推移



改良システムは、ほぼ全ての運転期間を通じて従来（現行システム）以上に触媒劣化を抑制できた。

実機DSAR中AsのC/H分布



RFCCではコークとなる割合が多い成分であるAsはC/H（炭素/水素比）分布が高い方にシフトしており、RDSでの水素化が抑制されている。

平均C/H : 1.34（現行）→1.40（改良）

図4-6 ボトムスルーによる触媒劣化の抑制

②-2-3 DSAR分子組成に適合したRFCC反応制御技術

JPECによる詳細組成構造解析結果（JACD情報）に基づき、DSARの分子サイズを実測評価する方法を考案し、DSARに含まれる全ての分子（約10万）について主骨格の大きさを算出した（図4-7：JACD情報に基づくDSAR分子サイズの推算）。

JACD情報

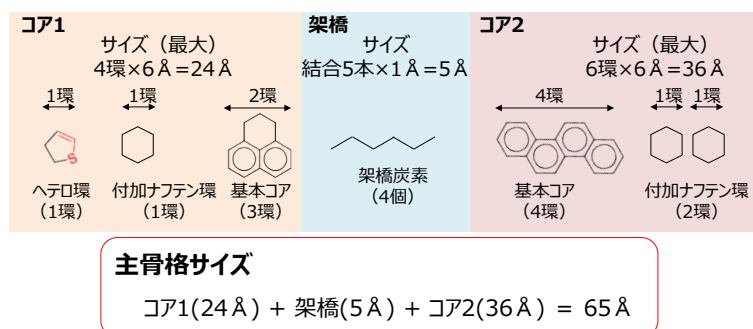


図 4-7 JACD 情報に基づく DSAR 分子サイズの推算

これに基づいて、DSAR の分子サイズに適合する細孔分布を持ち、RDS ボトムスルーに対応できる（耐メタル性、コーク選択性）RFCC 触媒を選択し、実機運転によりパフォーマンスを確認して、その優位性を検証した。

更なる全体最適を目指して、RFCC 触媒の活性点制御を行い、実装置運転得率において過分解を抑えてガソリンの選択性を向上した。

②-2-4 RDS/RFCC 全体最適処理の評価

以上の技術開発により、RDS・RFCC 両システムの優位性を引き出す運転を可能とし、RDS の安定運転と共に、RFCC のトータルゲインの向上と中間留分選択性の向上を実現し、開発目標を達成した。

表 4-5 RDS/RFCC 全体最適処理の評価

		RDS/RFCC 従来システム※1	RDS実証システム ※2 RFCC実証触媒2
分解ガス	vol. %	Base	-0.1
C3	vol. %	Base	-1.0
C4	vol. %	Base	+0.1
分解ガソリン(～195℃)	vol. %	Base	+3.3
分解軽油(195～360℃)	vol. %	Base	-0.5
分解残油(360～℃)	vol. %	Base	-1.5
コーク	wt. %	Base	-0.2
トータルゲイン	vol. %	Base	+0.3

※1 研究開発開始時の触媒システム

※2 RDSの余寿命を使ってS0.05%分シビアに水素化

③非在来型原油および残渣油の２次装置反応性解析（1305 ENEOS）

③－１ 研究目的

本検討の目的は、石油精製業の国際競争力強化に資する、非在来型・重質原油の価値評価方法の確立である。通常国内の製油所で処理している原油のＡＰＩ度は２５～４０程度であるが、非在来型原油として多く産出される重質原油（ＡＰＩ度２５程度以下）においては、低価格な反面極端にＡＰＩ度が低く（重質に）なるため、構成する各留分の収率を通常の中東系原油と比較すると、付加価値の高い軽質留分が少なく、付加価値の低い残渣油留分（ＶＲ留分）が占める割合が高くなる傾向がみられる（図４－８）。

また、非在来型重質原油から得られるＶＲ留分は、中東系の在来型原油と比較して「質」も大きく異なり、２次処理装置での反応に悪影響を及ぼすと考えられる重質なアスファルテン分やメタル分等の物質を多く含んでいることが想定される。そのため、非在来型重質原油を無制限に２次処理装置で処理することは困難である。そこで、これら反応に悪影響を及ぼすと想定される物質の構造を特定し、２次処理装置の反応へ与える影響を評価し明確にすることで、非在来型重質原油の価値をより高い精度で判断し、この選択を可能とし、各種燃料や化学品の生産を最大化することで石油のノーブル・ユースを推進し、製油所国際競争力強化に寄与することを目的としている。

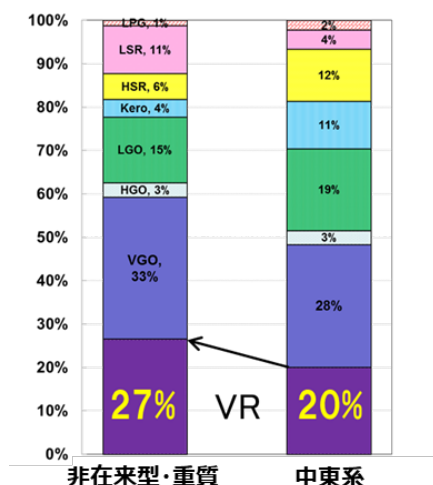


図４－８ 重質原油と中東系原油の収率比較

③－２ 研究の手段

非在来型重質原油を付加価値の高い軽質留分に転換するためには、蒸留精製した残渣油を溶剤脱れき装置（ＳＤＡ）でアスファルテン分を除去した脱れき油（ＤＡＯ：ＤｅＡｓｐｈａｌｔｅｄ Ｏｉｌ）を直接脱硫装置（ＲＤＳ）で前処理した後に接触分解装置（ＦＣＣ）で分解する装置構成が有効である。しかし、これら残渣油にはＳＤＡ装置で抽出率を低下させ、ＲＤＳ装置での反応性を悪化させる重質なアスファルテン分、またＲＤＳ装置での反応性やＦＣＣ装置での反応性および選択性を悪化させるメタル分が多く含まれると想定される。そのため、このＳＤＡ－ＲＤＳ－ＦＣＣの装置構成を想定し、一連の反応性や生成油収率・性状を把握できる評価スキーム（評価体制並びに評価技術）を確立することを目標とする。また、この評価スキームで得られたＤＡＯやＲＤＳ生成油およびＦＣＣ生成油を、これまでにＪＰＥＣにて開発を進め

てきたペトロリオミクス技術や非在来型原油成分分析技術を活用することで詳細組成構造分析を行う（図４－９）。

上述の技術を用いて、在来型原油及び非在来型原油 7 種類を処理した際の詳細組成構造分析データ等の情報をデータベースにまとめ、このデータベースを用いて反応モデルの構築を行う。これにより、廉価ではあるものの反応性が悪い非在来型重質原油の利用を拡大することが可能となり、大幅に原油の選択可能性が増大し、国内製油所の競争力強化に寄与することができる。

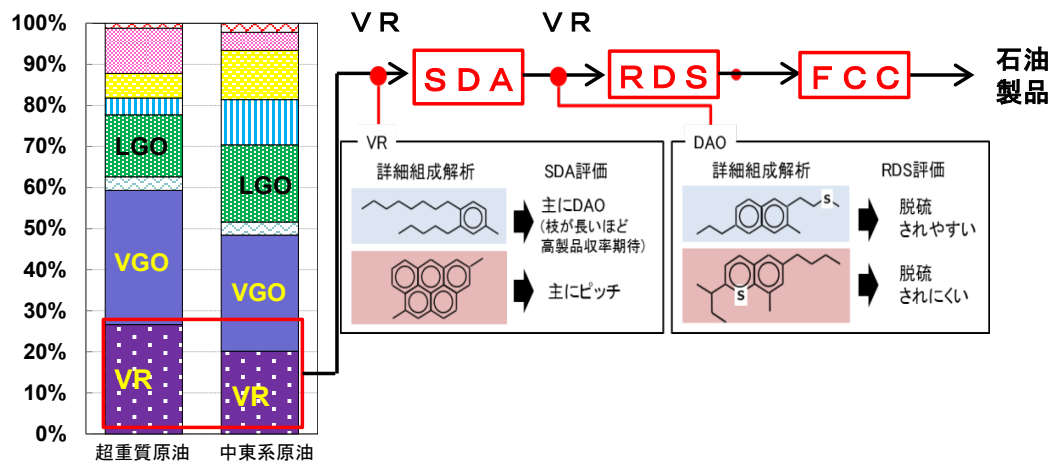


図４－９ 詳細組成構造解析のイメージ

③－３ 実施概要

本技術開発における実施概要を図４－１０に示す。本研究開発のために新規に建設した実験装置での評価を実施し、詳細組成構造解析を組み合わせ、評価方法を確立した。これをもとに原油データベースを構築している。

検討項目	2016年度	2017年度	2018年度	2019年度	2020年度
(1)SDA実験装置	設計	製作			
(2)FCC実験装置	設計	製作			
(3)原油選定・採取					
(4)実験装置での評価	RDS		SDA/RDS/FCC		
(5)詳細組成構造解析					
(6)反応器モデリング・カスタマイズ		RDS	SDA	FCC	(検証)
(7)データベース構築			3(通算)	5(通算)	7(通算)

図４－１０ 技術開発実績

③-4 アウトプット

具体的なアウトプットとして、以下の4項目について説明する。

- I. 2次処理装置反応性評価の技術開発
- II. 詳細組成構造解析の適用範囲拡大の技術開発
- III. プロセス挙動を表現するモデルの技術開発
- IV. データベースの構築

I. 2次処理装置反応性評価の技術開発

溶剤脱れき装置（SDA）は、常圧蒸留残渣または減圧蒸留残渣を溶剤と混合し、抽出操作により脱れき油（DAO）とSDAピッチに分離するプロセスである。RDS装置およびFCC装置に必要な原料油を考慮して、処理量0.5BDのSDA実験装置を平成28年度から平成29年度までに設計・建設した（図4-11）。その後、平成30年度から運転を開始した。運転条件として抽出温度や溶剤と原料油の比率などの操作因子を変更し、種々のSDA抽出率のDAOを採取した（図4-12）。高SDA抽出率ほど、DAOは高メタル濃度となることを確認した。さらに、ターゲットのSDA抽出率・メタル濃度に近い運転条件を確認し、標準条件を確定した。

FCCプロセスは、粉体（平均粒子径：75～100 μ m）のゼオライト含有触媒と原料油である重油を接触させ、重油を分解して主に燃料（ガソリン）を製造するプロセスである。FCC実験装置として、処理量0.1BDの装置を平成28年度から平成29年度までに設計・建設した（図4-13）。その後、平成30年度から運転を開始し、各種生成油を採取した。その中で、触媒循環量を調整するために、再生塔スライドバルブ（SV）の開度を調整し、触媒循環量の変化を確認した（図4-14）。これにより、任意の実験条件に制御する操作方法を確立した。その上で、ターゲットC/O（Cat/Oil）である6.5w/wを達成するための再生塔SV開度を確し、標準条件を確定した。



図4-11 SDA実験装置の外観

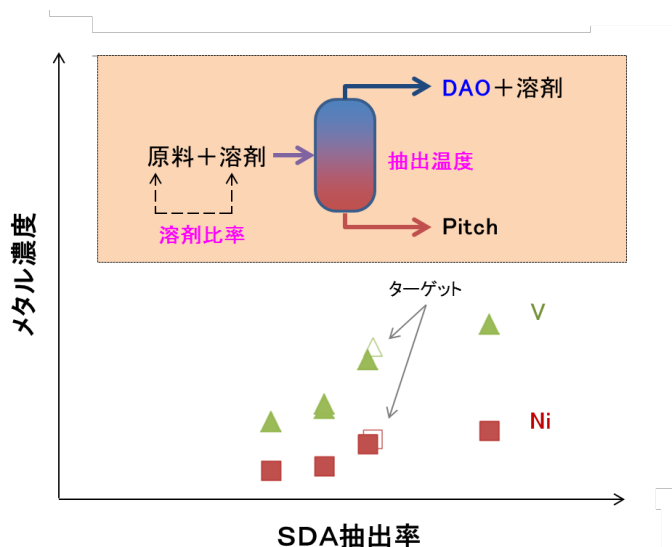


図4-12 SDAプロセスにおける運転条件の影響



図 4 - 1 3 F C C実験装置の外観

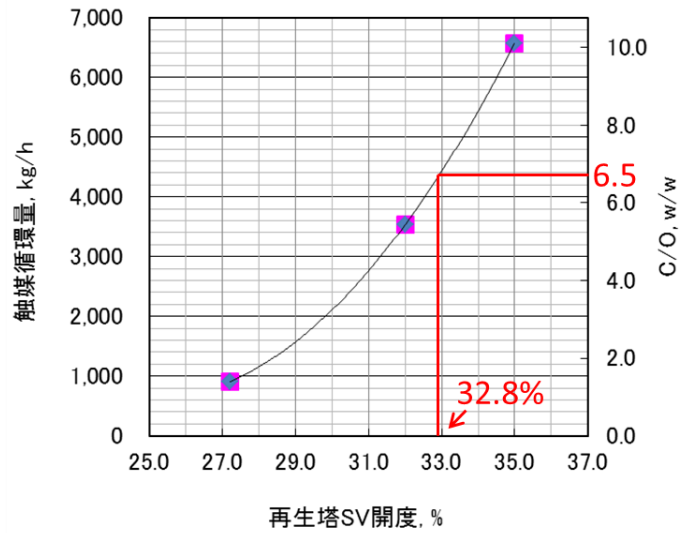


図 4 - 1 4 再生塔 S V 開度と触媒循環量の関係

RDSプロセスは、常圧蒸留装置の残渣分であるAR留分に含まれる硫黄分、窒素分、メタル分などの不純物を水素化反応により除去する装置である。RDS装置から回収されたRDS生成油は、後段のFCC装置に供され、分解反応により軽質化される。採取した原油を蒸留し、RDS原料となるAR留分を回収した。回収したAR留分の一般性状を表4-6に示す。5種類のARと1種類のDAOについてRDS反応性評価を行った。なお、超重質原油由来ARは、動粘度が高く、実験装置の配管が閉塞する懸念があったため、超重質原油由来ARと中質原油①由来ARを50mass%ずつ混合したものを原料油として使用している。脱硫反応のアレニウスプロットの結果を図4-15に示す。グラフの傾きに相当する活性化エネルギーは、DAOを除き全てのARにおいてほぼ同等の値であった。一方、グラフの切片に相当する頻度因子は、原料油ごとに異なる値を示した。

このようにSDA/RDS/FCCの各プロセスの反応評価体制を整え、データを蓄積した。

表 4 - 6 RDS原料性状

年度	平成28年度		平成29年度			
性状／油種	ALT -AR	超重質 -AR	DAO	中質 -AR	重質 -AR	軽質 -AR
密度(15℃) , g/cm ³	0.9723	1.014	0.9908	0.9883	0.9944	0.9347
硫黄分 , mass%	3.47	2.31	3.23	3.35	4.56	0.85
微量窒素 , mass%	0.20	0.40	0.281	0.297	0.223	0.195
アスファルテン分 , mass%	2.9	13.4	0.3	4.3	8	0.4

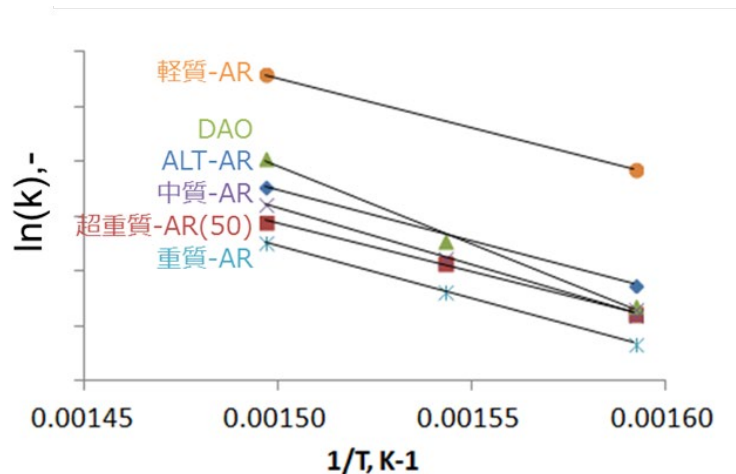


図 4 - 1 5 R D S 反応性結果

Ⅱ. 詳細組成構造解析の適用範囲拡大の技術開発

各種原料油および生成油に関して J P E C にて確立されたペトロリオミクス技術を用いて、詳細組成構造解析を実施した。S D A プロセスではアスファルテン分・多環レジン分が除去され、R D S プロセスではアスファルテン分が凝集緩和され、F C C プロセスでは側鎖と架橋の切断およびナフテンの開環が起きていることが確認できた(図 4 - 1 6)。このように、一連の検討の結果、S D A ・ R D S ・ F C C の各プロセスの原料油・生成油の特徴を分子レベルで把握し、各プロセスでの分子構造変化を可視化することができた。なお、詳細組成構造解析の原理については、平成 2 7 年度までの重質油等高度対応処理技術開発事業成果報告書を参照されたい。

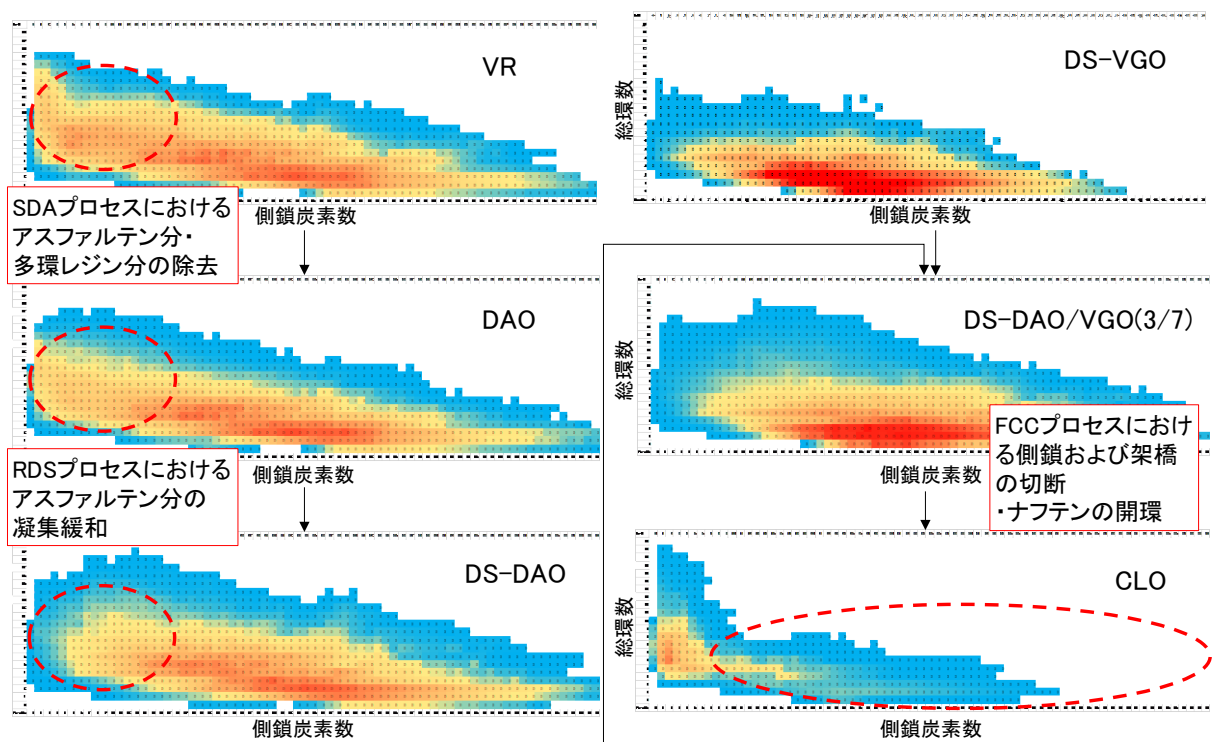


図 4 - 1 6 各プロセスの原料油・生成油の詳細組成構造解析結果

Ⅲ. プロセス挙動を表現するモデルの技術開発

SDAプロセスの原料であるVRの詳細組成構造解析を行った。解析結果について、JPECの全石油データベース（Comcat）を活用し、各分子のn-C5とのハンセン溶解度パラメータ差（ ΔHSP ）を確認した（図4-17）。その結果、全環数が少なく側鎖の炭素数が多い分子は ΔHSP が小さく、全環数が多く側鎖の炭素数が少ない分子は ΔHSP が大きいことを確認した。次に、SDAプロセスの原料（VR）と生成油（DAO）の詳細組成構造解析結果を基に、 ΔHSP とSDA抽出率の相関を確認した（図4-18）。その結果、原料VRの中で ΔHSP が小さい分子ほど溶剤であるC5への溶解性が高く、SDA抽出率が高くなることを確認した。この結果から、SDAプロセスがハンセン溶解度パラメータで整理できることを見出した。

また、原料油中の分子タイプと ΔHSP の関係を確認したところ、 ΔHSP の高い領域で、レジジン分やアスファルテン分が増加していることを確認できた（図4-19）。

上記のとおり分子タイプとハンセン溶解度パラメータを使った整理を進めることで、SDAプロセスのDAO収率・不純物濃度を平均誤差おおむね10%以下で推算できるSDAモデルを構築した（図4-20）。

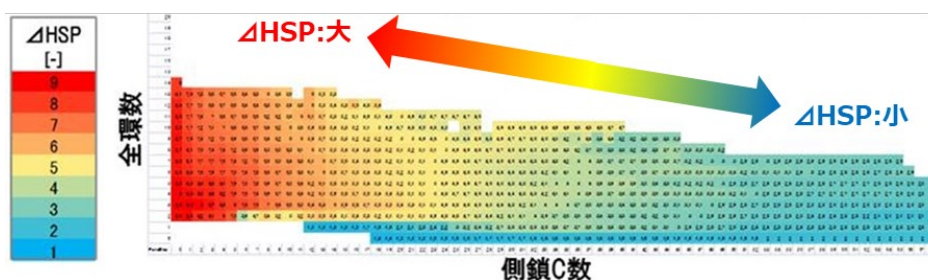


図4-17 VRの詳細組成構造解析結果
(n-C5とのハンセン溶解度パラメータ差： ΔHSP)

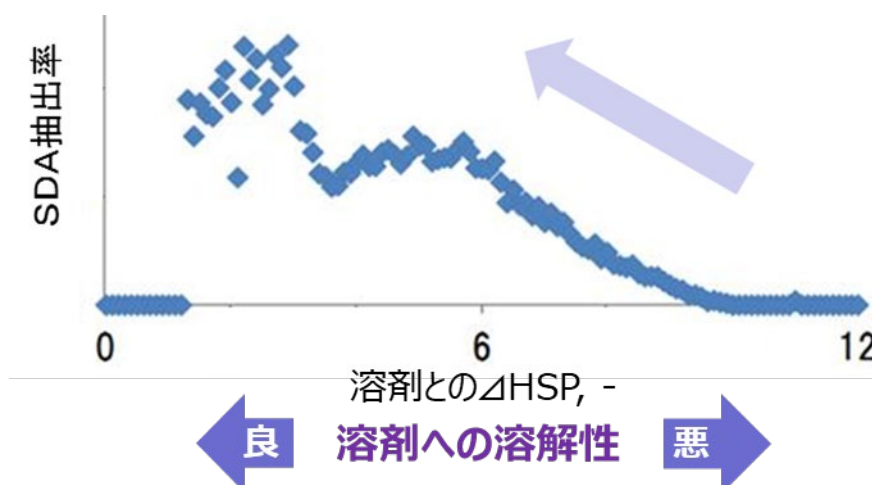


図4-18 SDA原料分子の ΔHSP とSDA抽出率の相関

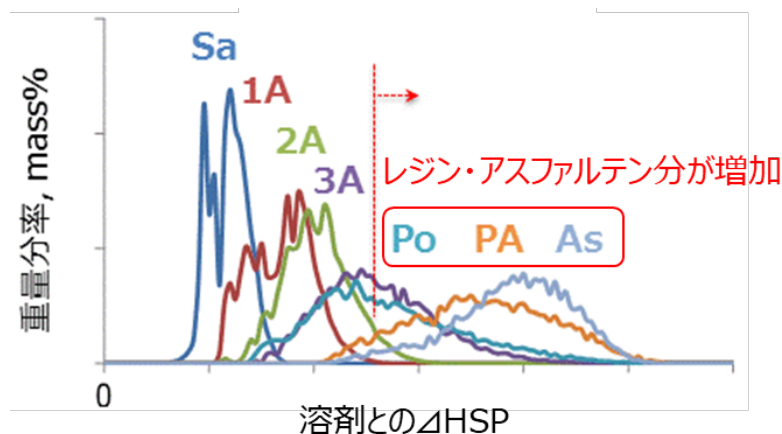


図 4 - 1 9 原料油中の分子タイプと Δ HSPの関係

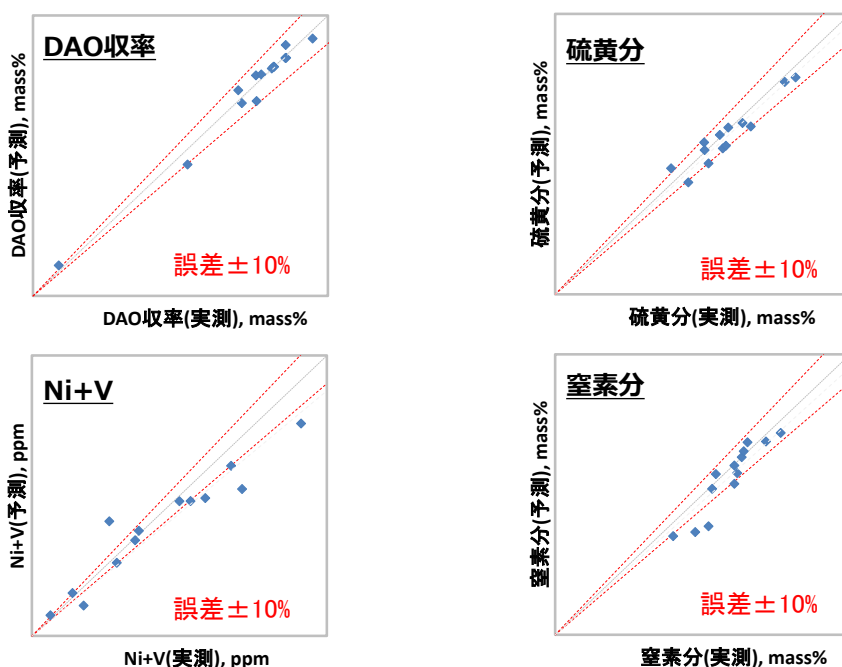


図 4 - 2 0 DAO収率・性状の実験値とSDAモデルによる予測値の比較

上記のSDAモデルの考え方を拡張し、RDSプロセスにおいてもその反応性を予測できるモデルの構築を行った。RDSの脱硫反応性を予測するためには、原料油中に含まれる硫黄分のタイプを、反応しやすい易脱硫黄、中程度の中脱硫黄、反応しにくい難脱硫黄の3タイプに分類することが有用であることがわかっている。そこで、SDAの原料油性状とDAO収率から、DAOの易脱/中脱/難脱硫黄比率を予測可能とするモデルを構築した(図4-21)。さらにこの関係を用いることで、様々な原油から採取したDAO原料油のRDS反応性を予測できるモデルを開発した(図4-22)。

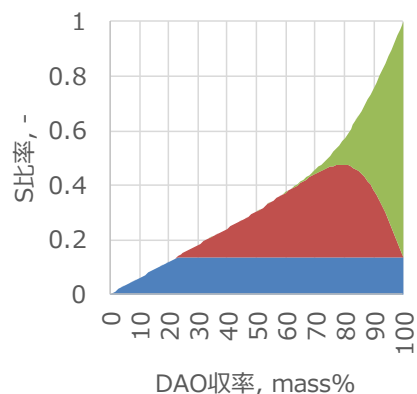


図 4-21 DAO 収率と硫黄タイプの推移

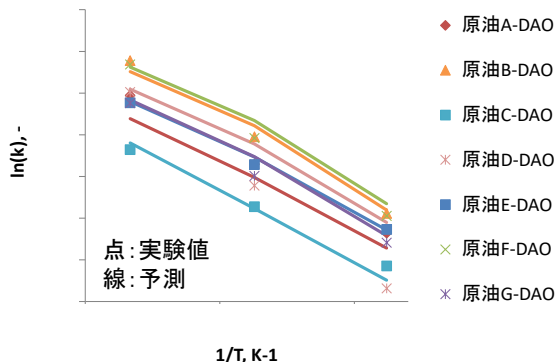


図 4-22 DAO の RDS 脱硫反応性予測

FCC プロセスについては、一般性状から FCC の生成油収率・性状を予測できる汎用 FCC シミュレーションを活用した。これにより、FCC 生成物収率を実験値に対する計算値の平均誤差を 10% 以下で予測できる FCC モデルを構築した (図 4-23)。

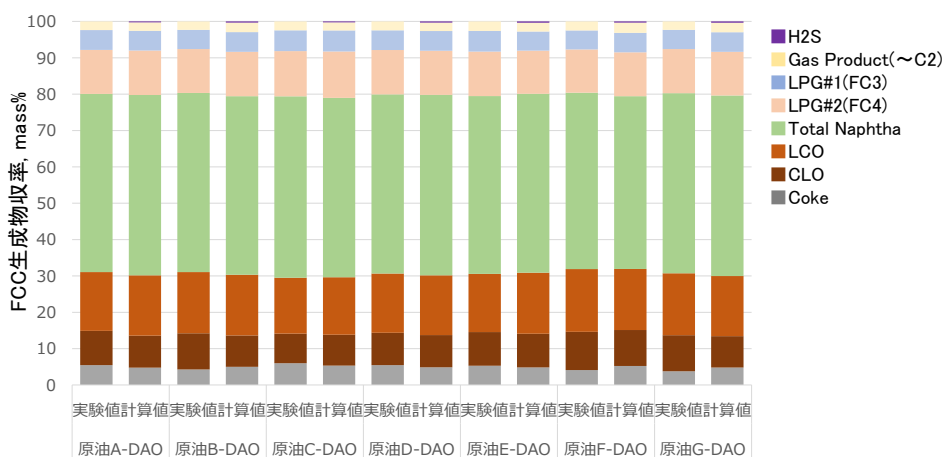


図 4-23 FCC 生成物収率の実験値と計算値の比較

IV. データベースの構築

SDA・RDS・FCC プロセスにおける 7 原油の評価結果を用いて、採取原油の収率、各プロセスの原料性状、反応性因子に関してデータベースとしてまとめた (表 4-7)。このデータベースを活用することで、製油所への適用可能な非在来型原油 10 種類を原油選定対象とすることに成功した。

表 4-7 データベース(一部抜粋)

原油の収率					RDS原料の性状										RDS反応性因子									
試験項目	Naph	Kero	LGO	HGO	AR	密度	密度	動粘度	動粘度	元素分析	元素分析	CHNS	CHNS	CHNS	CHNS	加付分析	加付分析	加付分析	加付分析	FT-IR-ME	反応性			
測定項目	-145℃	-280℃	-380℃	-380℃	380℃	15℃	70℃	40℃	100℃	-	Ni	V	C	H	N	S	飽和分	芳香族分	樹脂分	アスファルト分	-	RDS	SDA	
単位	質量%	質量%	質量%	質量%	質量%	g/cm3	g/cm3	mm2/s	質量ppm	質量ppm	質量%	質量%	質量%	質量%	質量%	質量%	質量%	質量%	質量%	質量%	-	Si	N,5R	N,6R
原油A	13.9	22.0	16.1	3.7	44.3	0.9723	0.9346	969	44.9	9.66	11	43	84.9	11.6	0.2	3.5	46.0	39.6	11.5	2.9	○	4.48	3.04	1.37
原油B	10.0	6.9	16.1	3.5	63.4	1.0140	0.9767	774000	1360	19.6	84	360	87.1	10.1	0.4	2.3	34.8	32.1	19.7	13.4	○	4.16	2.48	0.74
原油C	10.3	18.4	11.7	2.7	57.0	0.9944	0.9569	4930	133	14.1	26	85	84.4	10.7	0.2	4.6	35.0	41.0	16.0	8.0	○	4.24	1.19	0.70
原油D	12.7	16.5	18.2	2.8	49.8	0.9883	0.9508	6980	135	12.7	39	110	83.8	12.4	0.3	3.4	38.5	37.3	19.9	4.3	○	4.35	1.91	1.11
原油E	16.2	18.6	18.6	3.5	43.2	0.9347	0.8966	543	30.6	4.81	8	11	86.7	12.1	0.2	0.9	61.2	26.7	11.7	0.4	○	4.74	3.07	1.35

③－５ 本研究開発の活用例

構築した原油データベースおよびプロセス挙動モデルを活用して、実際の原油選択スキームに反映した。具体的には、従来の原油選択スキームから、本研究開発にて構築した収率・性状予測の考え方をを用いて制約条件を改善した原油選択スキームに改良した。

実際に、ある製油所における原油処理比率について、従来スキームと新スキームの推奨原油構成を比べた結果、新しい原油選択スキームでは従来モデルよりも中質原油や重質原油の割合が増加した（図４－２４）。このように、装置での処理可能な範囲を正確に見極めることで、より重質な原料を選択し、実際に処理することができた。このように、一連の結果を活用することで、原油選択の最適化と競争力強化に寄与することができる。

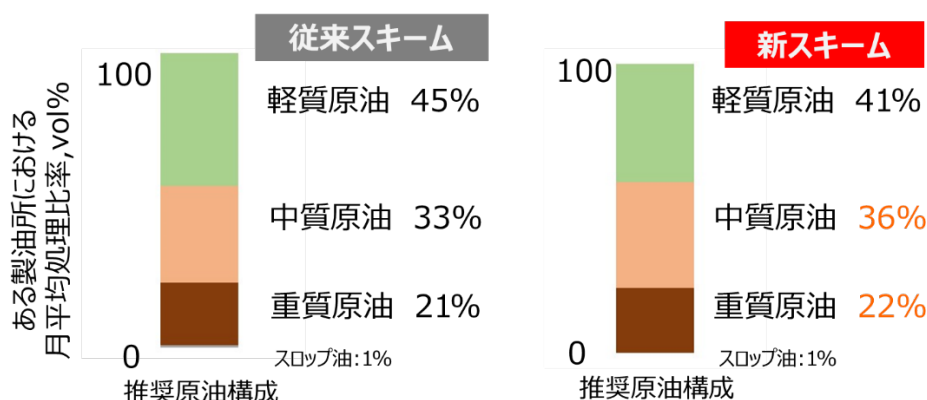


図４－２４ FCC生成物収率の実験値と計算値の比較

③－６ まとめ

非在来型原油および残渣油の２次装置反応性解析については、各項目の開発目標を達成することができた（表４－８）。また、本研究項目を活用し、実機製油所への原油選択への活用によるメリット創出に繋げた。

表４－８ 研究開発項目と成果および判定

項目	成果	判定
①原油選定・採取	・通算１２種類の原油選定・採取を完了	達成
②実験装置での評価（SDA）	・実験装置の安定稼働を達成し、標準条件を決定 ・種々の抽出条件および原油（通算７種類）のSDA評価を完了	達成
②実験装置での評価（RDS）	・SDA実験装置の抽出油であるDAOのRDS評価を完了し DAOのRDS反応性が原料重質度と抽出深度で整理できることを確認	達成
②実験装置での評価（FCC）	・実験装置の安定稼働を達成し、標準条件を決定 ・種々のDS-DAOを評価し、原料性状とFCC反応性の関係を確認	達成
③詳細組成構造解析	・JPEC基盤研殿のご協力の基、SDA/RDS/FCCプロセスの原料油・生成油の分析・解析を実施 ・各プロセス挙動を分子レベルで理解	達成
④反応モデリング・カスタマイズ	・実験結果を基に、SDA/RDS/FCCプロセスの収率・性状を予測するモデルを構築	達成
⑤データベース構築	・SDA/RDS/FCCについて、原料と生成油の一般性状および反応性の影響因子を抽出 ・通算原油７種類のデータベースを構築	達成

④重質残渣油のRFCC原料化のためのRDS触媒システム開発(1306 ENEOS)

④－１ 研究開発内容

国内の石油需要は年々低下傾向にあり、とりわけ重油製品の需要低下が顕著で、今後もさらに縮小していくと予想されている。一方で、低価格な非在来型の超重質原油の処理ニーズは今後ますます高まっていく。超重質原油は、重質留分である減圧蒸留残渣（VR）の比率が高く、このVRに多く含まれるアスファルテンは、多環芳香族、硫黄、V、Ni、長鎖アルキル基から構成された巨大分子であり、分子内・分子間で π - π 結合やファンデルワールス力などの結合力により強力に凝集している。よって、アスファルテン分子内に取り込まれている硫黄分や金属分を除去するのは非常に難しく、加えて、触媒活性点を被毒して、失活させる。この対処法として、アスファルテン凝集緩和法などが提案されているが、直接的にアスファルテンを取り除くことが本質的に有効かつ効率的な技術であるといえる。

そこで、溶剤脱れき（SDA）プロセスを活用すれば、VRのアスファルテンをSDAで抽出除去した脱れき油（DAO）を得ることができる。このDAOを処理するために最適なRDS触媒システムを構築することで、RDSで処理したDAOを原油流動接触分解装置（RFCC）にて分解することが可能となる（図4－25）。

これにより、VR留分をガソリンやBTX（ベンゼン、トルエン、キシレン）などの化学品原料に変換することができ、石油のノーブル・ユース化が図れる。また、VR留分を多く含む超重質原油を処理することも可能となり、国内製油所の競争力強化に寄与することができる。

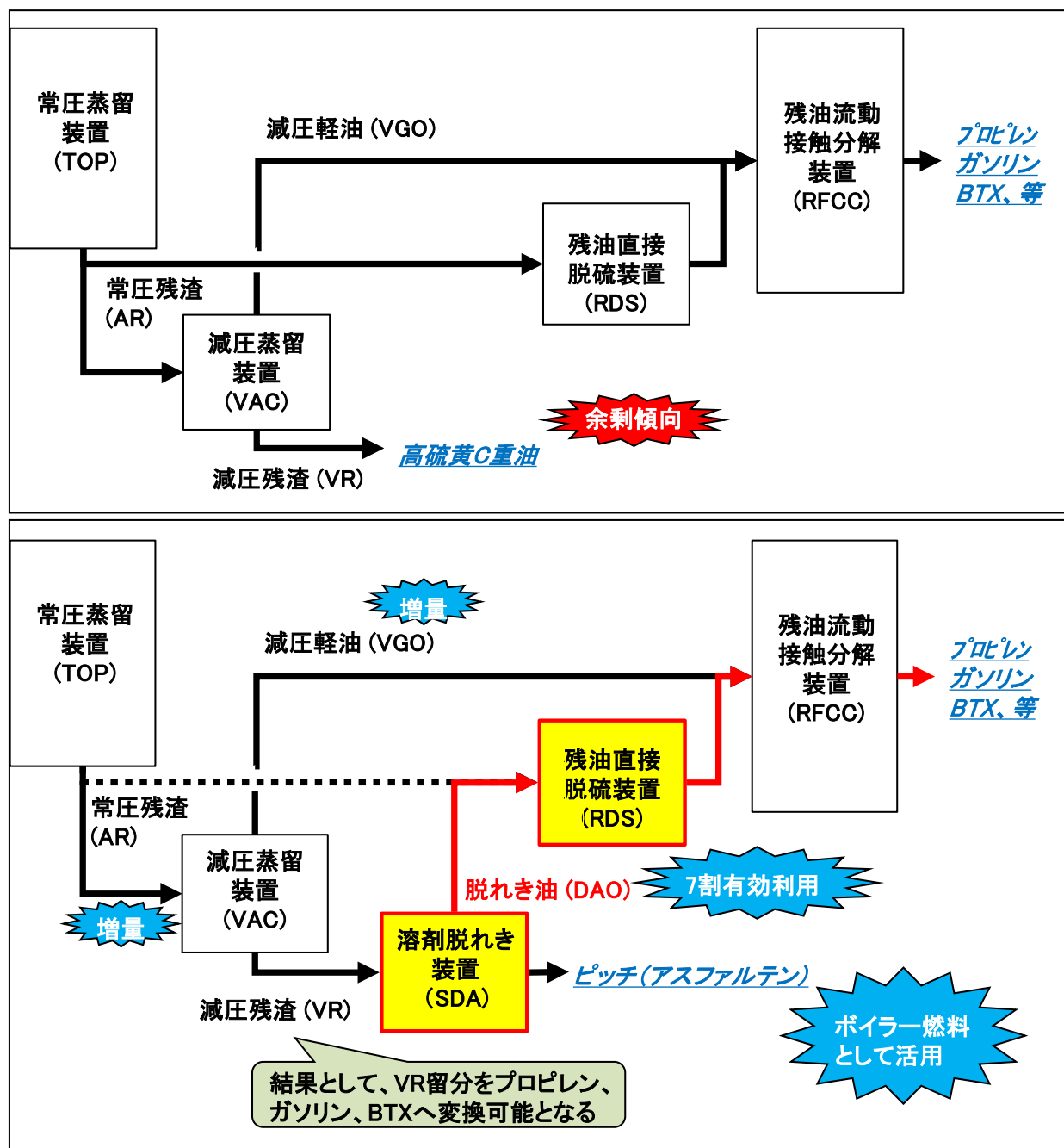


図 4-25 従来プロセス（上）と開発プロセス（下）の比較

DAOは、常圧残渣（AR）と比較して低硫黄、低アスファルテンながら、RDS触媒における触媒劣化が大きいことがわかっており、DAO処理に適したRDS触媒システムの設計が望まれている。

さらに、副生成分のピッチ量を削減するためにはSDAの抽出率を上げる必要があるが、その場合、DAOの性状は悪化してしまうため、世界で稼働している装置の多くは抽出率の低い（抽出率50%以下の）プロパン脱れき装置である。抽出率50%以下ではほとんど金属分は含まれず、硫黄分も原料VRの30%以下しか含まれない。しかし、抽出率が70%を超えると、金属含有量が急激に増加し、また、後段のRFCCでコーク生成を引き起こすと言われている残留炭素分（CCR）も多くなり、DAOの性状が急激に悪化してしまう（図4-26）。

そこで、本事業では、抽出率の高い（抽出率70%以上の）SDAから得られる、劣悪な性状を有するDAO処理を想定した難易度の高い技術開発を目指している。

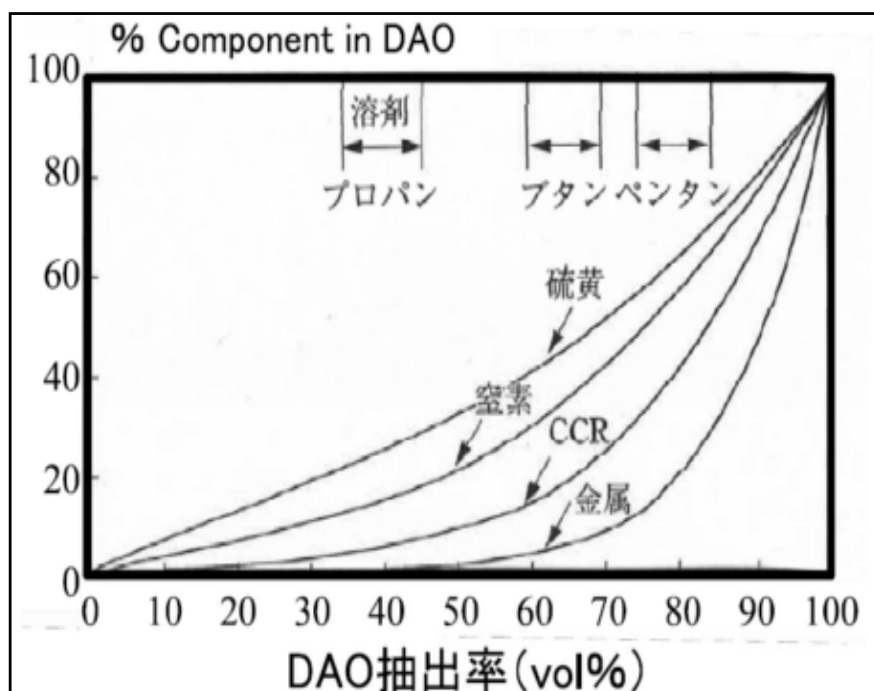


図4-26 DAO抽出率とDAO中の各種被毒物質の関係

（出典：石油学会「石油精製プロセス」）

DAO処理時の触媒劣化状況を把握するため、従来のAR処理型RDS触媒システムを用いて、DAOを原料油に用いた事前検討（寿命試験）を行った。触媒システムは、実機RDS装置で使用されている触媒（脱メタル触媒2種、脱硫触媒2種）を用い、2塔反応装置で実験を行った。反応に用いた原料油の性状を表4-9に示す。実験は、実機装置と同様に、生成油中に残存する硫黄分が目標硫黄分になるように、触媒の劣化とともに反応器の温度を上げていった（いわゆる、生成物硫黄分一定運転）。

表4-9 事前検討寿命試験時の原料油比較

		AR	DAO	VR（参考）
メタル(Ni+V)	w t p p m	60	63	176
アスファルテン	w t %	2.8	0.02	8.0

寿命試験の結果を図4-27に示す。運転開始当初は、DAO処理の場合、補正温度（目標硫黄分を採取するのに必要な温度）は低く推移したが、運転日数200日経過付近から徐々に劣化が見られ、最終的には、AR処理時よりも短寿命となった。従来のAR処理では、1年運転が可能な触媒システムでありながら、アスファルテンを含まないDAOを処理した場合、劣化がむしろ急激になるという、予想に反した結果であった。

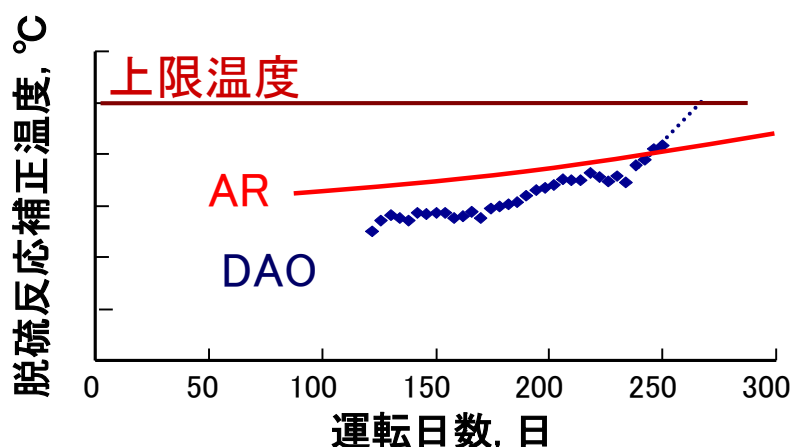


図 4－27 AR 処理用触媒システムを用いた DAO 処理寿命試験結果

以上のように、DAO は反応性が高いように見える油種でありながら、従来の AR 処理用触媒システムでは、1 年間運転を行うことが困難であることが確認されたので、今後、DAO を RFCC で処理しようとする場合、DAO 処理に特化した RDS 触媒システムの開発が必要となる。

以下、具体的なアウトプット項目ごとに説明する。

当初 5 カ年の研究開発において、前半は脱メタル触媒システムの構築により、SDA 抽出率が 70% 時においても、DAO を RDS で 1 年間安定的に処理でき、かつ RFCC での性能向上に寄与するために RDS 生成油として窒素濃度を 300 ppm 低減することを目標として技術開発を進めてきた。その結果、研究開発の進捗に伴い、前倒しで目標達成できるめどが立った。そこで、4 年目以降、さらに高い抽出率（80%）における DAO を処理することに特化した RDS 触媒システムの構築を目指した。具体的には、① 脱メタル触媒システムの構築、② 脱硫触媒システムの構築、③ 80% 抽出率 DAO の処理技術確立、の 3 項目を実施した。

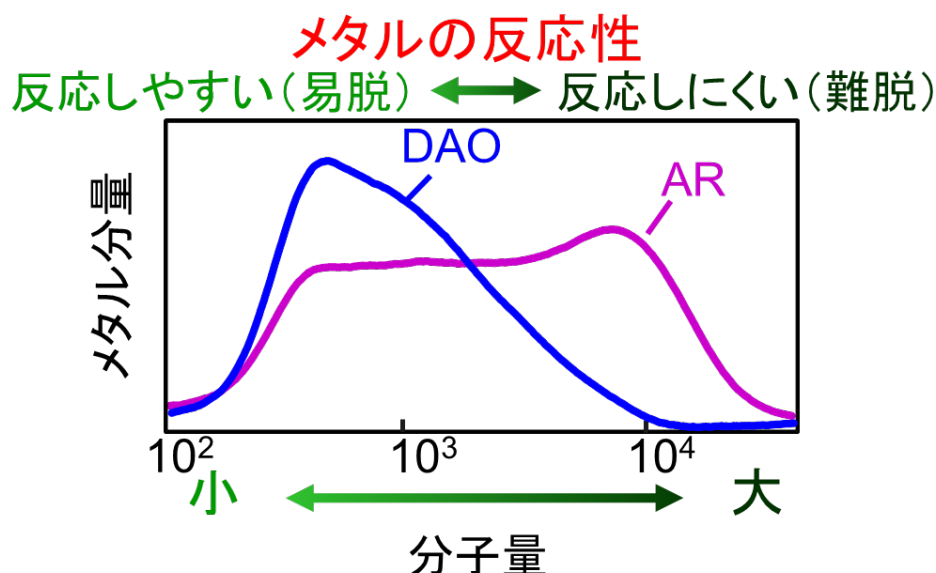
④－1 脱メタル触媒システムの構築

重質油には、多くの重金属成分が含まれており、RDS 装置において触媒被毒の原因となる。そこで、本研究において、重金属分の詳細分析も極めて重要な要素技術である。ここでは、GPC-ICP 分析について記載する。GPC-ICP は、分子サイズの違いにより GPC カラムで分離された成分を、ICP 分析する方法であり、重油中に含まれる硫黄分、バナジウム分、ニッケル分等を含む化合物の分子量分布を測定することができる。分子量の定量性は決して高くないが、およそその分子サイズの大小を議論することができるメリットがある。

図 4－28 に AR と DAO の GPC-ICP 分析結果を示す。AR と DAO ではバナジウム化合物の分子量分布が異なり、AR では高分子側のバナジウム化合物が多く存在しているのに対して、DAO では高分子側のバナジウム化合物はほとんど含まれておらず、比較的分子量の小さいバナジウム化合物の比率が多いことが分かった。これは、SDA 工程でピッチとして分子量が大きいメタ

ル化合物が除去されているためと予想される。

一般的に、分子量が大きいメタル化合物の方が難反応性であると予想されることから、DAOは、炭化水素の分子量こそ大きい、バナジウム化合物は比較的小さい、反応性の高い留分であることが予想された。



AR: 易脱と難脱が双方存在

DAO: 大部分が易脱(巨大分子＝難脱は脱れき済)

図4-28 メタル化合物の分子量分布と反応性の関係

一般的なRDS触媒システムの充填の考え方を図4-29に示した。RDS装置に用いる触媒は、メタル劣化に対応するため、反応器入口付近には、メタル堆積により細孔入口が閉塞しにくいように、細孔径の大きい触媒を選択するケースが多い。その後、反応器出口に向かって、触媒細孔径の小さいものが使用される。これは、反応器前段で脱メタルされて、後段になるほどメタル量が減ってくるとともに、後段ほど高活性触媒が望まれることから、高活性とするために比表面積を大きくすることが有望であり、細孔径は小さいものになる。その結果、反応器前段では比較的活性は低いものの、メタル耐性(メタルキャパシティ)が高い触媒を充填し、反応器後段では逆にメタルキャパシティが少ないものの、活性の高い触媒となる。中間部分は、反応ギャップが大きくなるようにグレーディング充填する。

一般的な触媒グレーディングの考え方を基に、AR処理用のRDS触媒システムは、個々の触媒やそれぞれの触媒比率を決定しているが、従来型のAR処理用のRDS触媒システムでは、DAO処理には不適であった可能性がある。すなわち、前述の通り、DAOはARよりも脱メタルされやすいメタル化合物の比率が多く、上記脱メタル触媒1～3選定の考え方にズレがあると、本来発揮できる触媒が期待通りの性能を発揮できない可能性が想定される。RDS触媒は多孔体であるが、

メタル堆積は必ずしも触媒内部まで拡散してから脱メタル反応が進行するわけではなく、多くの場合は、触媒細孔入口付近に堆積しやすい。仮に、D A Oのように反応性の高いメタル化合物の比率が多い原料油が、活性の高い触媒層に流入すると、想定よりも触媒細孔入口付近でのメタル堆積が早まる可能性が推測できる。

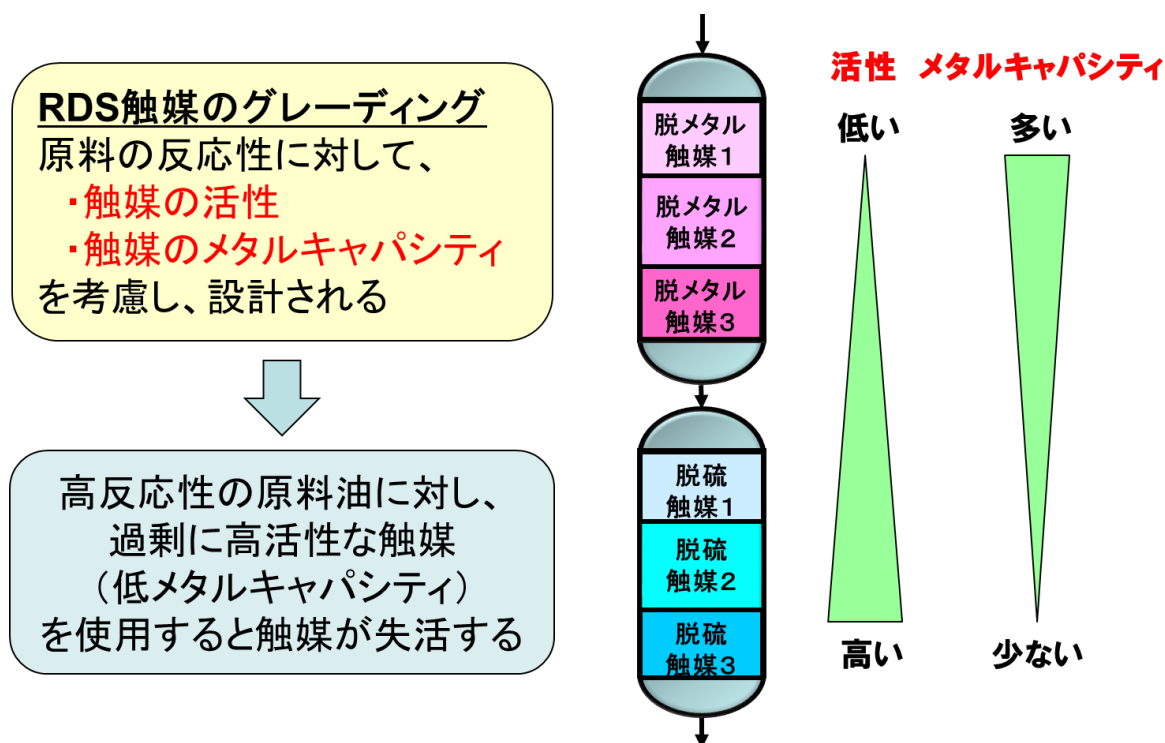


図4-29 一般的なRDS触媒の特徴

D A O処理特有の劣化要因を明確化し、1年間運転可能とするために必要な対策を講じることとした。

まず、D A O処理時の触媒劣化機構の解明のために、D A OとA Rの反応性を比較した。触媒には市販触媒を用い、高圧流通式固定床装置に充填して、原料油にA RまたはD A Oを用いて試験を行った。脱硫反応と脱メタル（バナジウムとニッケル）反応における接触時間の影響、および脱硫反応と脱窒素反応の関係を図4-30に示した。脱硫率（左図）で見ると、A RもD A Oも同様の挙動を示していた。それに対して、脱メタル率（右図）の挙動は全く異なっていた。すなわち、D A Oの方が反応性は高く、高い脱メタル率を示していた。これは、前述の通り、D A OにはA Rに含まれるような高分子金属化合物が少ないため、脱メタル反応が進行しやすい結果になったと考えられる。以上の結果を基に、脱メタル反応性の違いを数値化することができ、シミュレーターへ反映することが可能となった。

また、脱硫と脱窒素の反応性の関係性を見ると、A R、D A Oともに脱硫反応に比べると脱窒素反応は低いことが分かるが、特にD A Oの脱窒素選択性が低いことが分かった。RDS装置では、通常生成油中の硫黄分が一定となる運転を行う。脱窒素選択性が低いと同一の生成油中硫黄濃度を目標にRDS運転をしても、生成油中の窒素分が増加してしまうことになる。その結果、RDS装置

の後段装置にあたるR F C C装置において、R F C C触媒の窒素による活性点被毒を引き起こし、R F C Cでの性能低下を招いてしまう。したがって、D A OをR D S装置で処理する際には、R F C C性能の維持あるいは向上のために、これまで以上にR D S触媒において脱窒素選択性を高める必要がある。

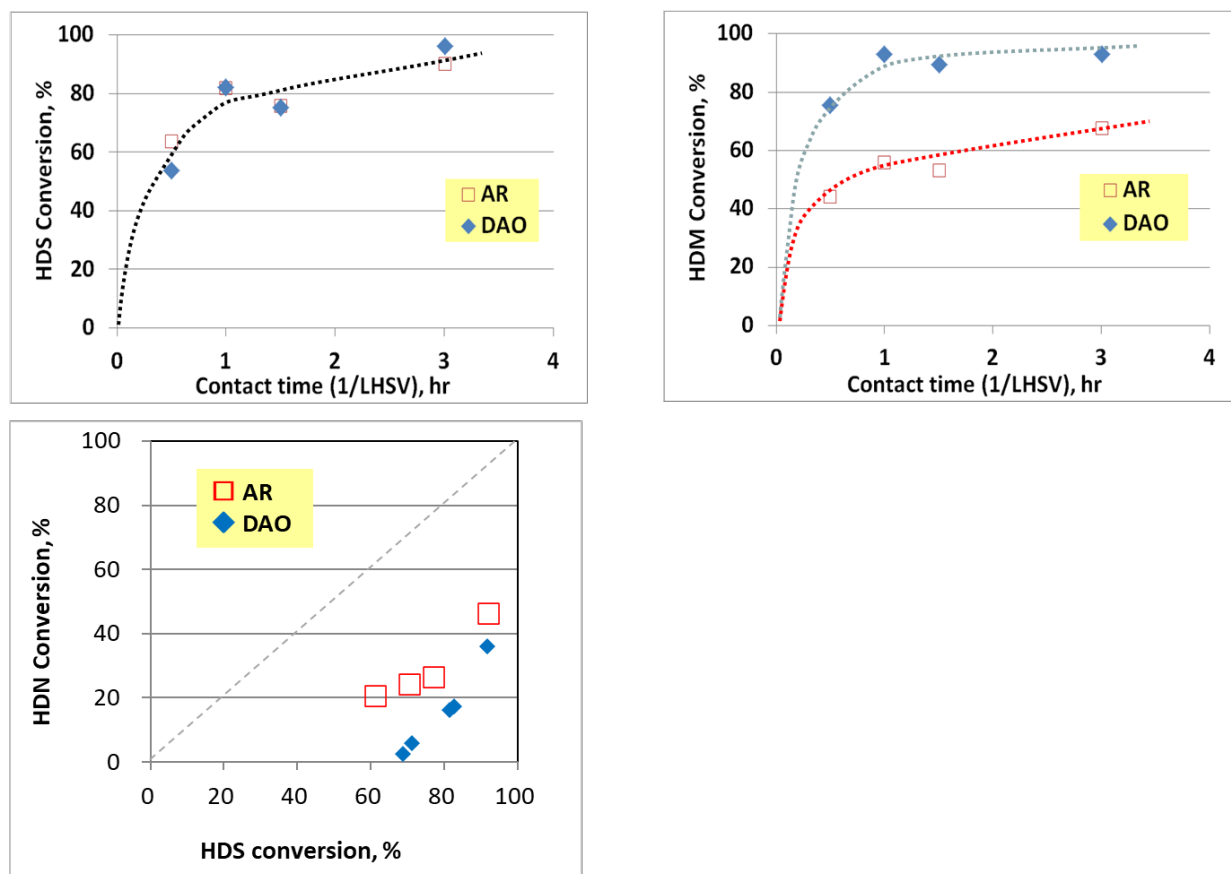


図 4-30 DAOとARの反応性比較

従来型のAR処理用RDS触媒システムを用いてDAOを処理すると、1年運転ができなかった原因を究明するため、図4-31に示すような仮説を立てた。すなわち、比較的活性の高い触媒層（図5における脱メタル触媒3など）において、AR処理時には反応しやすいメタル分は既に除去され、難脱メタル比率が高い状態の原料油が流入する場合と比較し、DAO処理時には反応しやすいメタル分の比率が多いため、触媒表面での反応が急激に進行し、触媒細孔入口が閉塞するのではないかと考えた。

この仮説を検証するため、EPMAによる使用済み触媒の断面分析を実施した。EPMA断面分析では、触媒の断面方向にどの程度の成分が存在しているかを調べることができる。その結果、図4-31（下部）に示すように、AR処理時には比較的触媒ペレット内部まで金属分が堆積していたのに対して、DAO処理時には触媒ペレット外表面部分に集中的に堆積していることが確認された。以上のことから、DAOをRDS装置で処理しようとする場合、DAOの反応性に応じた脱メタル触媒システムの構築が重要であることが分かった。つまり、触媒細孔内の拡散と原料中メタル

化合物の反応性の関係から、脱メタル触媒システムを構築していかなければならないことを示している。この知見をもとにDAO処理に特化した触媒システムに必要な機能を整理した。

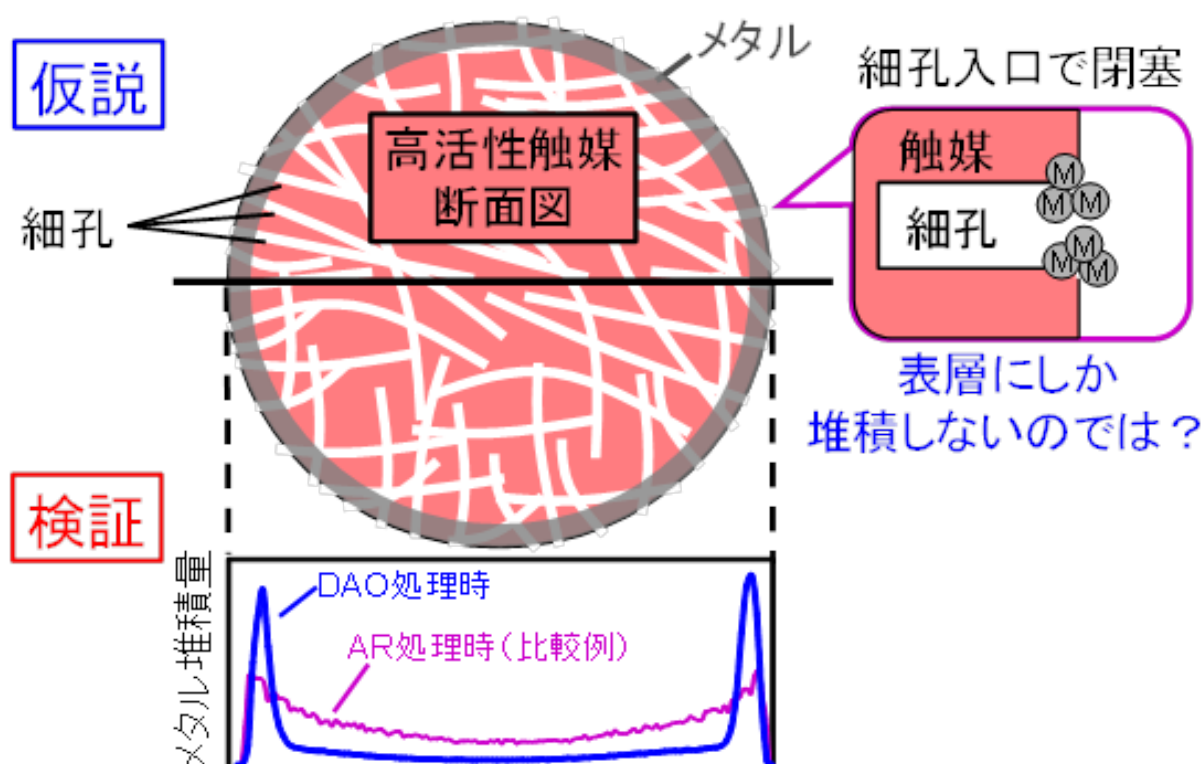


図4-31 DAOとAR使用後の触媒上メタル堆積の比較

AR用RDS触媒システムを用いて、原料をARとDAOそれぞれ実施した寿命試験の終了後、反応器内の触媒を分割抽出した際の、反応器内のメタル堆積分布を図4-32に示した。横軸は、反応器の入口側からの触媒位置を示し、縦軸は、触媒上のメタル堆積量を示した。また、赤点線は、各触媒のメタルキャパシティを示している。

キャパシティに対して、大きな差があることが分かり、本来持っている触媒性能ほど実際には働いていない部位があることが確認された。一方で、後段触媒の前半部分（図中：反応器入口から50%付近）は、メタルキャパシティに対して実際のメタル堆積量は近づいており、メタル劣化による触媒失活の懸念がある。

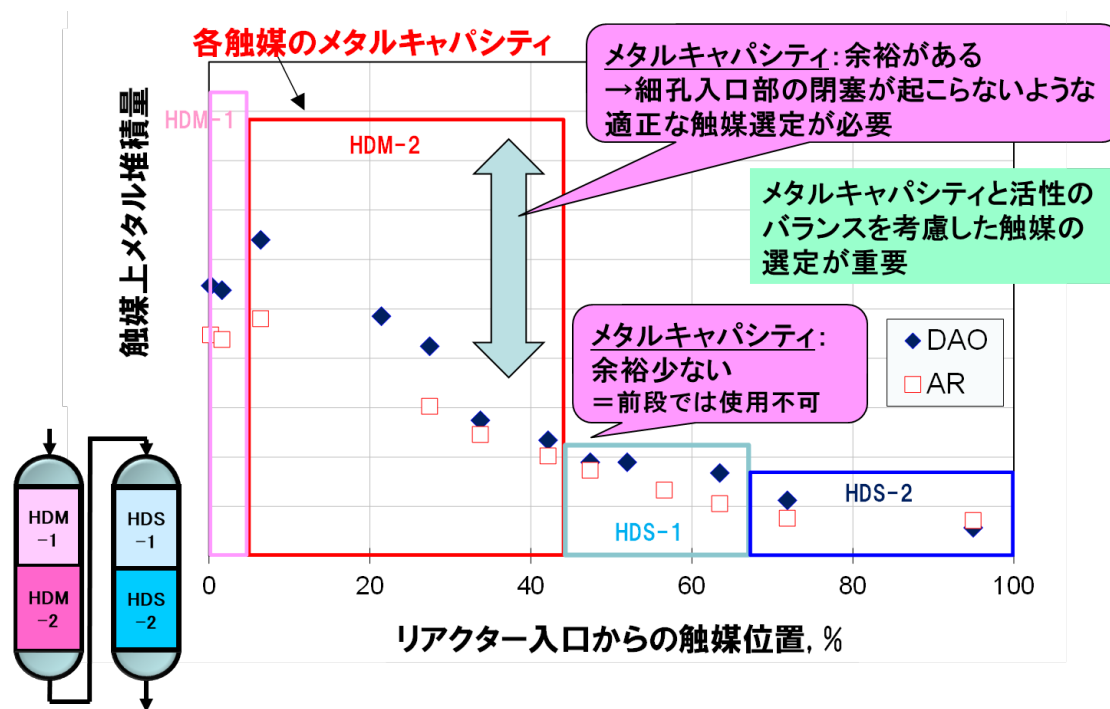


図 4 - 3 2 D A O 処理に望まれる触媒機能

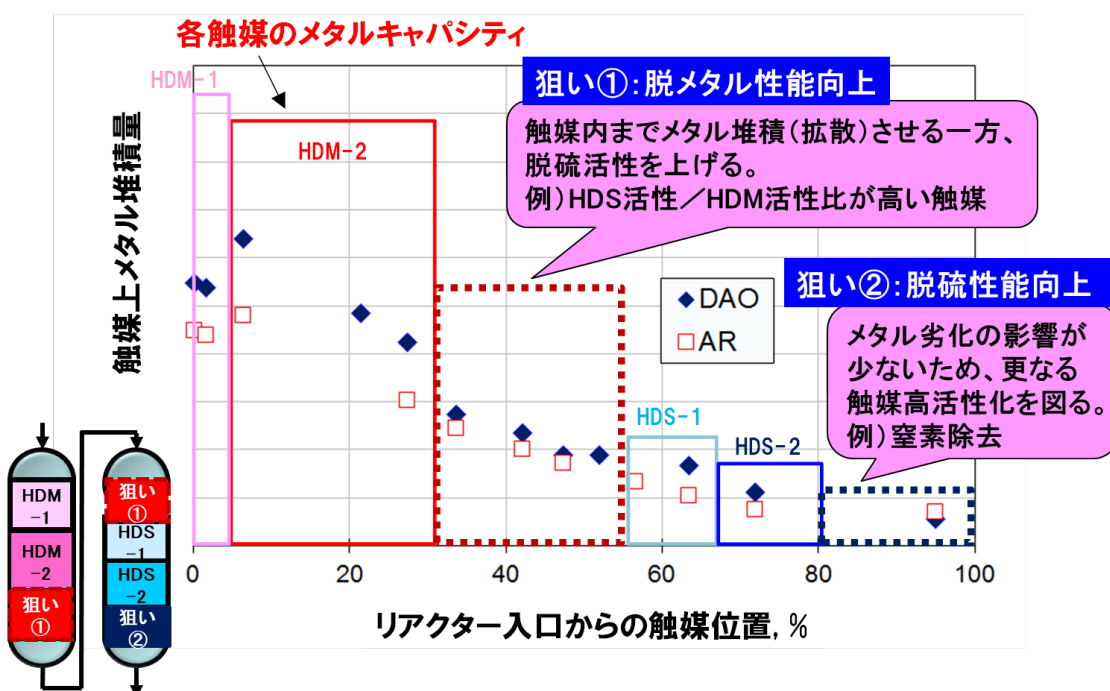


図 4 - 3 3 D A O 処理用触媒システムのコンセプト

これらの知見を踏まえて、D A O 処理のために必要とされる触媒機能について図 4 - 3 3 に示す。前段触媒の後半部分（図中：反応器入口から 30 ～ 55 % 付近）には、現状よりも脱硫・脱メタルを効率的に進められる触媒が必要と思われる。すなわち、触媒内までメタルを拡散させ、触媒内部まで堆積でき、かつメタルキャパシティに余裕があったので、多少メタルキャパシティを犠牲にしてもシステム全体を高活性にできるような高活性触媒の方が望ましい。そのためには、メタル分子の

拡散が進行しやすいような比較的大きい細孔を有し、かつ脱硫活性を向上させた触媒が想定される。そこで、当該部位に必要な触媒選定を行った。

なお、最後段の触媒部位については、メタル流入量が比較的少なく、メタル劣化による触媒失活の懸念は少ない状態が予想される。そこで、より高活性な触媒を最後段に配置できる可能性があるため、下流装置のR F C Cにおいて、より分解を促進できるような性状のR D S生成油を提供できる触媒が望ましい。具体的には、R F C C触媒の酸点を被毒すると考えられている窒素分を低減できるような高脱窒素活性触媒や、R F C Cにおいてコーク生成を引き起こすと言われている残留炭素分を低減できるような高脱残炭活性触媒を選定し、配置できる可能性がある。

以上の知見を基に、新たに脱メタル触媒（HDM-3）を見出すことができた。詳細は割愛するが、HDM-3は、HDM-2よりもメタルキャパシティは低いが高活性が高く、HDS-1よりも活性が低いもののメタルキャパシティが高い脱メタル触媒である。この触媒を用いて、脱メタル触媒のグレーディング方法を確立し、D A Oを処理した1年間の安定運転を検証した。

図4-34に、パイロット試験装置を用いた寿命試験結果を示す。従来触媒システムを用いた事業開始前と比較して、脱メタル触媒HDM-2の一部を新触媒HDM-3に置き換えた改良触媒システムでは、約10℃程度高活性であることが確認された。原料油の反応性を考慮した脱メタル触媒システムの採用により、脱メタル層でのメタル除去効率が上がり、後段の脱硫触媒層へのメタルリークを抑制でき、その結果長寿命運転が可能となったと考えられる。

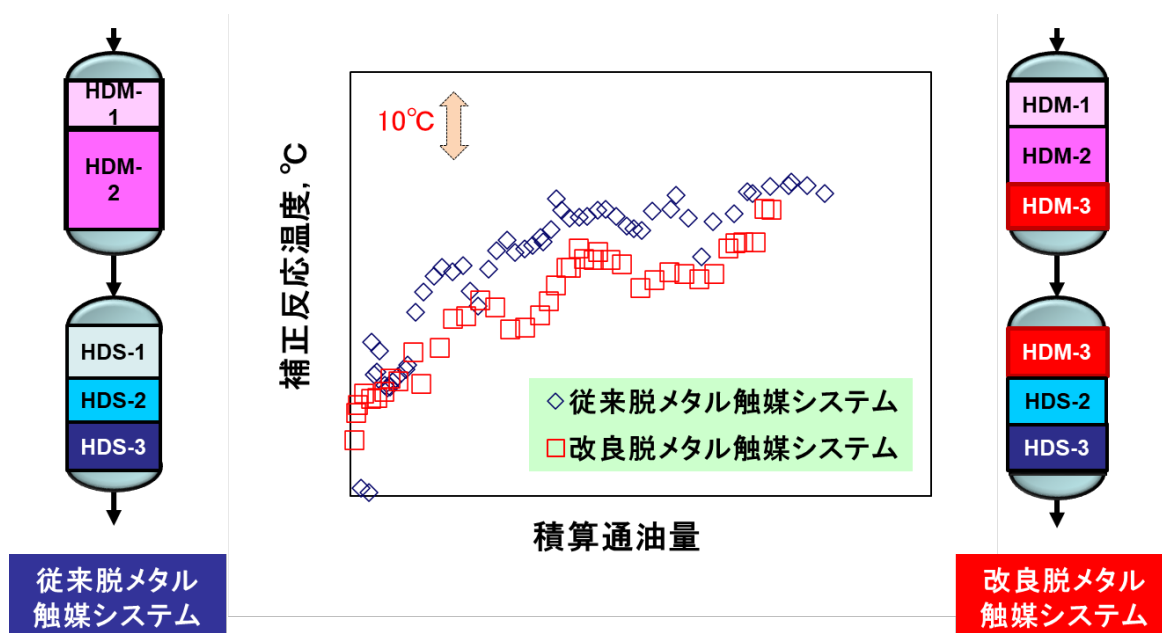


図4-34 開発脱メタル触媒システムによる実機検証

④-2 脱硫触媒システムの構築

本技術開発においては、実機R D S装置で高性能を検証する必要があることに加えて、R F C C装置で良いパフォーマンスを示せるかが重要である。そこで、実機R D S装置に開発触媒システムを導入し、さらにR D S生成油がR F C Cの原料であるとして、R F C Cにおいても本事業開発前後の反応性の変化を整理した。

本事業開始前のRDS触媒システムに対して、脱メタル触媒だけでなく脱硫触媒もD A O処理に特化した開発触媒システムを本年度実機装置に充填し、反応性を比較した。最終的な改良触媒システムおよび生成油窒素濃度の推移を図4－35に示す。通常、実機RDS装置では、生成油硫黄分を目標濃度に設定し、1年運転できるように原料油、処理量、反応温度などを調整しながら運転する。一方、RDS生成油中の窒素分は、触媒の性能によって大きく変わり、生成油硫黄濃度が同じでも、上記原料油種、反応温度によって違いが生じることになる。詳細は割愛するが、従来触媒（HDS－1、HDS－2）よりも高活性なHDS－4を用いることで、ばらつきはあるものの現行触媒システムに対する開発触媒システムにおける窒素濃度比は400～800wtppm程度となり、目標値300wtppmを大きく超える結果となった。

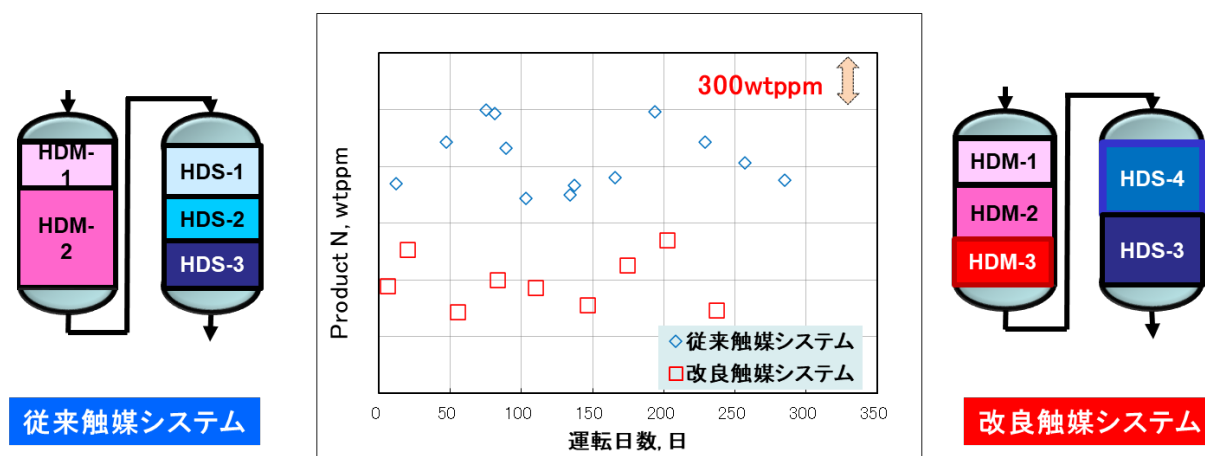


図4－35 開発触媒システムによる実機検証（生成油中窒素濃度の推移）

そのほか、R F C C性能も含め、事業前後の実機RDS装置、実機R F C C装置での性能比較結果を表4－10にまとめる。製油所ではRDS装置、R F C C装置ともに、原料油種、触媒種その他、運転条件も日々変化している。特に、5年も経過すると、運転の方針・考え方も変化することは珍しくない。したがって、事業開発前後の比較に際し、原油種・R F C C触媒種は異なるものの、極力その他の条件（処理量・D A O比率・R F C C温度・C A T／O i l比等）は同じ条件のものを選んだ。表2に示すように、改良触媒システムから得られるRDS生成油は、従来触媒システムのものと比較すると、脱硫率、脱メタル率が高く、生成油中の窒素分も目標の300wtppmを大幅に上回る660wtppm低減できることが確認された。これは、改良触媒システムの脱硫および脱メタルの活性、さらには脱窒素選択性がそれぞれ大幅に向上したことに起因すると考えられる。

さらに、得られたRDS生成油が原料となるR F C Cの反応性を比較したところ、R F C C転化率として1.9%、ガソリン収率として1.6%の改善が見られた。実機R F C Cの性能向上に、D A O用に特化して開発した本触媒システムが大きく寄与したものと考えられる。

表 4－10 技術開発前後のRDSおよびFCCの反応性比較

		技術開発前 代表値	技術開発後 代表値
RDS原料硫黄の濃度	wt%	Base	+1.0
RDS生成油			
脱硫率	%	83	87
脱メタル率	%	78	81
窒素濃度変化分	wtppm	Base	▼660
RFCC反応性			
転化率	%	Base	+1.9
ガソリン収率	%	Base	+1.6

④－3 80%抽出率DAOの処理技術確立

本事業では、RDS触媒システムの性能向上に関する研究を実施し、残炭分や窒素分の反応解析および劣化解析の方策を講じる段階まで至った。RDS装置におけるDAO処理の場合、DAO中に含まれるメタル化合物の構造に起因する脱メタル反応性が大きく異なることが、これまでの検討からわかっている。これに対応する最終的な脱メタル触媒システムの構築を完了し、実機検証を行った。すなわち、SDA抽出率として70%における実証化にほぼ目途が立ち、技術の完成は計画よりも前倒して開発が進んでいる。

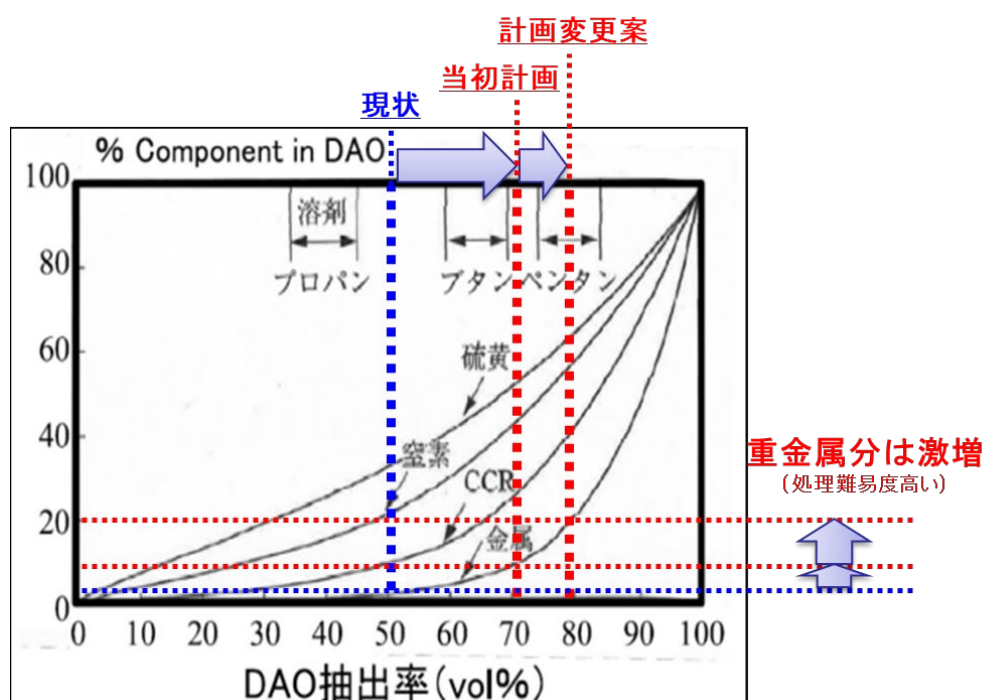


図 4－36 SDA抽出率増加によるDAO性状の重質化

一方で、SDA装置の稼働は、副生するピッチ量に大きく影響を受け、ピッチ量の低減がプロセス全体の競争力に直接影響を与える。図 4－36 に示すように、抽出率が70%の時と比べると、

抽出率80%の場合、DAO中の不純物は急激に増加する。とりわけ、バナジウムやニッケルなどの重金属は激増する。しかしながら、ピッチ量が従来の30%から20%に低減できるため、同一ピッチ処理条件で考えれば1.5倍のVR処理が可能になる(図4-37)。これまでの開発状況を鑑みて、抽出率70%時のDAO処理技術開発にほぼ目途が立ったことから、事業4年目以降、開発目標を抽出率80%時のDAO処理技術開発に上方修正した。これは非常に難易度の高い目標変更になるが、それまで実施してきた3年間の研究成果を活用していけば、達成可能な目標レベルと考えられる。

目標変更した新たな技術開発を進めるうえで、原料油の確保は必須である。RDS原料油として抽出率80%のDAOを得るためには、高効率JXTG1305が保有しているSDAベンチを活用して、DAOを調製する方法がある。ただし、SDAベンチから得られる高抽出率DAOは、少量であることから、少量の原料でもRDS反応性を精度良く、かつ効率的に評価できるような、新たな評価技術の確立が必要となる。そこで、JPECペトロリオミクス研究室でも保有しているハイスループット実験装置の導入を行った。

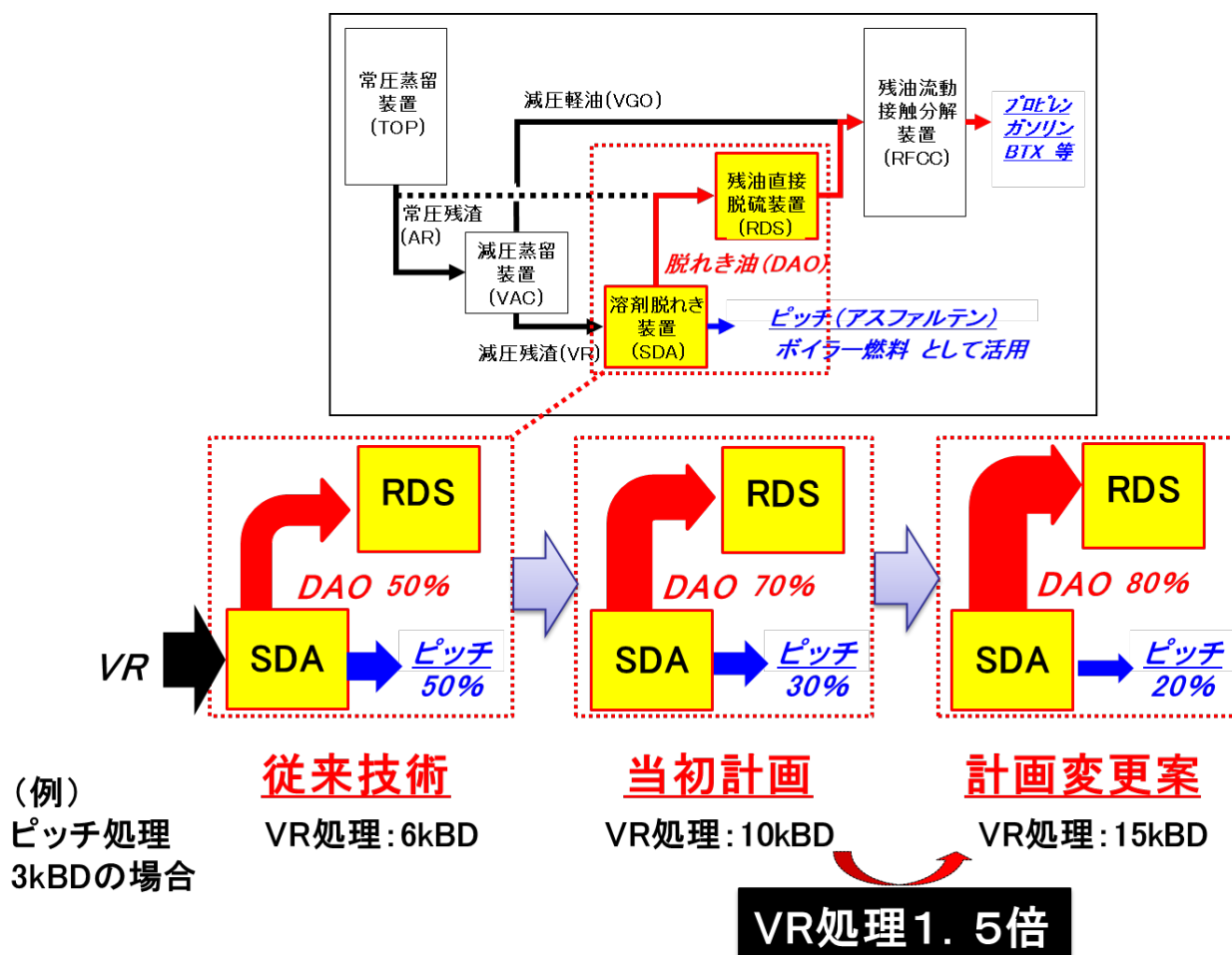


図4-37 SDA抽出率増加の効果

高効率JXTG1305保有のSDAパイロット装置で採取した高抽出率DAOを分析し、性状の変化を比較した。抽出率70%台のDAO中に含まれる不純物を100として、抽出率80%台

のDAO中不純物の割合を表4-11に示した。その結果、抽出率が70%台から80%台に上がった際、全体的に不純物の量は増加するが、とりわけ金属分（V，Ni）の増加が顕著であることがわかった。

抽出率の高いDAOを処理しようとする場合は、これまで構築してきた脱メタル触媒システムを更に強化する必要があることを再確認できた。そこで、高抽出率DAO処理に特化した触媒システムの構築のために、少量DAOの評価が可能なHTE装置を用いて実際に高抽出率DAOを原料に用いた反応性評価を行った。

表4-11 DAO抽出率が異なるDAOの性状比較

DAO性状(相対値)	従来DAO (抽出率70%台)	高抽出率DAO (抽出率80%台)
Sulfur	100	116
Nitrogen	100	120
Vanadium	100	186
Nickel	100	214
CCR	100	137
Asphaltene	100	158

実験結果として図4-38に脱硫反応、図4-39に脱メタル反応のアレニウスプロットをそれぞれ示す。触媒には、HDM-2とHDM-3をそれぞれ組み合わせて用いた。抽出率70%台のDAOを用いた場合と比べると、抽出率80%台のDAOを用いると予想通り反応性は大幅に低下した。反応温度として約20℃分に相当した。一方、従来触媒HDM-2よりも高活性なHDM-3を用いると、HDM-2のみを使用した場合と比較して約4℃程度（HDM活性）改善することが分かった。このようなHTE装置を用いたKinetic試験を実施することで、DAO処理用に構築したシミュレーターに必要なシミュレーション・ファクターを取得することができ、反応・寿命予測や運転管理に使用できるようになった。

なお、本実験に関しては、2種類の触媒組合せで2種類の原料油種の評価について、温度4点の試験を実施した。従来の固定床流通式反応装置と比較すると、約1/4の試験期間でデータを採取することができた。また、使用した原料油の量も1/5程度で評価することができ、今回のような少量しかない原料油の評価にはきわめて有効な装置であることを、改めて確認することができた。

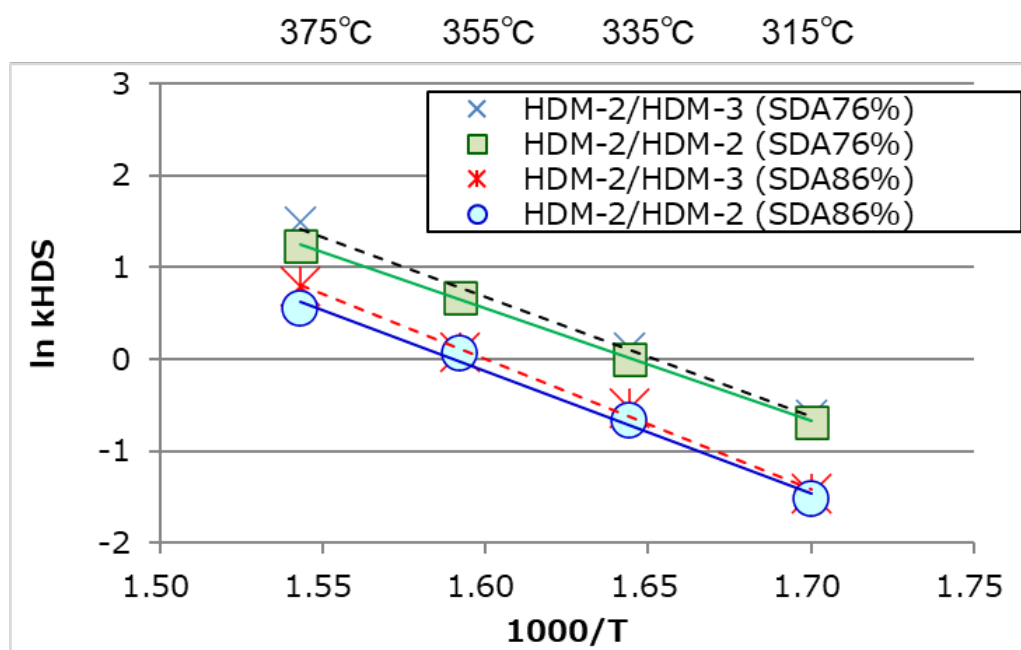


図 4 - 3 8 抽出率の異なる D A O の反応性比較 (H D S 反応)

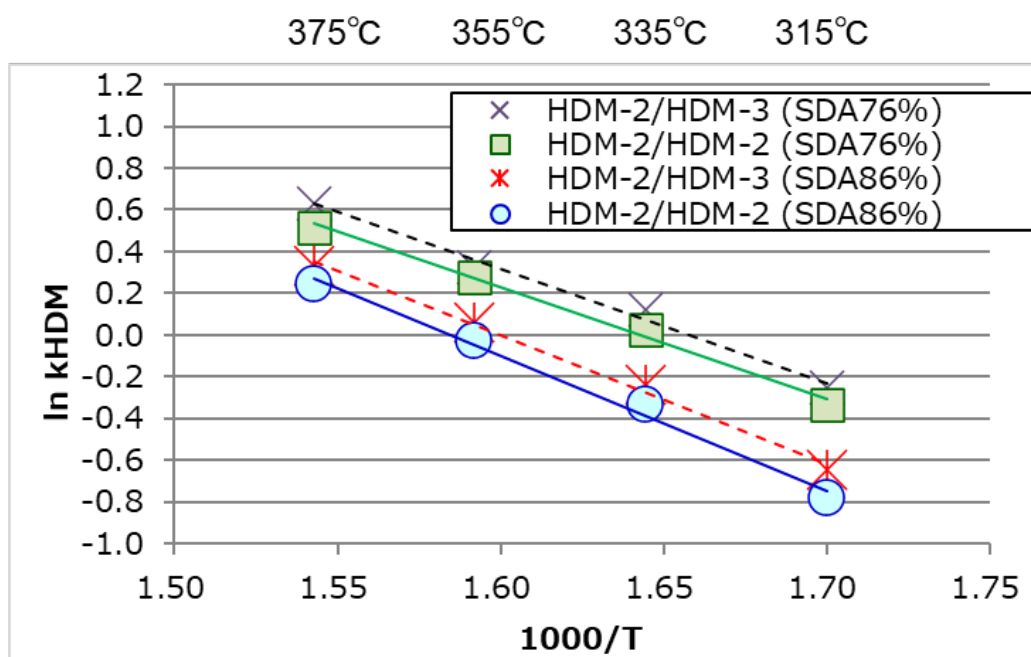


図 4 - 3 9 抽出率の異なる D A O の反応性比較 (H D M 反応)

本事業においては、当初目標として 70%抽出率の D A O を処理する技術開発を目指して進めてきたが、既に 70%抽出率 D A O の処理技術の確立にめどを立てられたことから、期中に計画変更し、更なる高難度の目標である 80%抽出率 D A O 処理技術開発を目指して研究を加速してきた。その結果、前述のように 80%抽出率 D A O を用いた脱硫評価も実施でき、かつ 80%抽出率 D A

〇の反応性パラメーターも取得することができた。そこで、この８０％抽出率ＤＡＯを処理技術について、触媒システムだけでなくプロセス面からも検討した。チューニングしたシミュレーターを用いて各種対策を数値化し、それらの効果を明確にするため、１年運転可能な処理量として相対値で提示した。その結果を図４－４０に示す。

従来ＤＡＯ（抽出率７０％台）を処理する際の処理量を１００とした相対値では、高抽出率ＤＡＯ（抽出率８０％台）の場合、８２％程度しか処理できないことが分かった。これは脱硫活性比で表現すると、１．４倍の脱硫活性向上がなければ１年運転できないという非常に高いハードルである。それに対して、ＲＤＳ触媒システムの見直し、具体的には、脱メタル触媒の見直しおよび脱メタル触媒と脱硫触媒の比率見直しにより約４％分の改善が図られる。また、脱硫装置では、一般的に水素クエンチによりリアクター間あるいは触媒層間の温度を調整する運転をしており、その水素クエンチ量の調整により約３％分の改善も期待された。

それらに加えて、いくつかの追加パターンも検討した。まず、原油軽質化により触媒への負荷を低減する方法である。この場合、原油ＡＰＩとして０．３程度軽質化すれば、従来ＤＡＯ処理時と同等の処理が可能となる。また、運転期間を短くする方法もある。その場合は、２５０日程度での運転に相当する。さらに、触媒量を増量する方法、すなわち反応器の増設により触媒量を増量する場合では、従来装置の約１５％分の増設によってかのかうになるというレベル感をそれぞれ得ることができた。８０％抽出率ＤＡＯを処理するニーズおよびコストメリットに対して、これら方策のメリット・デメリットを総合的に評価し、判断することで、高抽出率条件への移行は行える状態になった。必要な時期・段階に至った際には、今回の検討は非常に有効な判断材料を提供できるようになり、本事業の目標を十分達成できたと考えている。

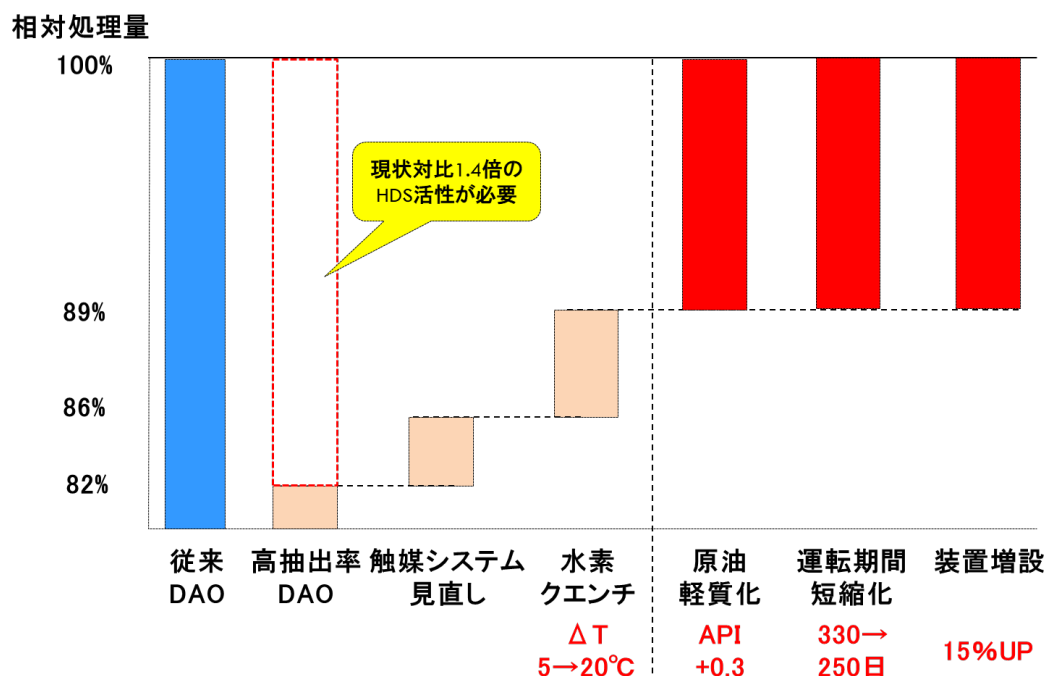


図４－４０ 高抽出率ＤＡＯ処理策の影響予測

脱メタル性能の向上に関しては、D A Oの詳細解析と反応性評価、およびD A Oに特化した反応シミュレーターの構築により、D A Oに特化した脱メタル触媒システムを構築できた。また、D A OとA Rを混合処理する際、相溶性の悪化から夾雑物が発生し差圧上昇の問題が生じたが、適正な原油選択および夾雑物除去触媒の選定により、差圧抑制が可能となった。以上の結果から、設計した脱メタル触媒システムを用いることで、実機装置での1年間の安定運転が可能となった。

脱硫触媒の性能向上についても、新たに設計したR D S触媒システムにより、実機R D S装置において期待通り高脱硫・高脱窒素活性を示すことを確認した。脱硫性能もさることながら、脱窒素性能・脱残反性能も向上し、R F C C装置での転化率の大幅な向上が確認できた。以上のことから、当初目標を前倒しで達成できた。

そのような状況から、H 3 1年度からは開発目標を更に引き上げ、S D A抽出率8 0 %時のD A Oを処理する技術開発も実施した。S D Aパイロット装置で調製した少量の抽出率8 0 %台のD A Oの反応性を評価するための分析技術・反応性評価技術を確立した。最終的に、高抽出率D A Oの反応性を数値化することにより、望ましい触媒システムの構築と必要とされる投資や原油調達についても、数値化が可能となった。

5. 研究開発の実施・マネジメント体制等

(1) 研究開発計画

表 5 - 1 研究開発計画

研究開発項目		2016FY	2017FY	2018FY	2019FY	2020FY	2021FY
委託	非在来型原油成分分析技術開発	減圧蒸留装置導入	新規減圧蒸留法確立				
		ARの構造、反応性評価手法検討		AR反応性解析・予測モデル開発		検証・改良	
				原油混合影響評価手法検討		検証	
	RDS/RFCC全体最適化技術開発		RFCC 反応モデル・得率予測モデル開発			検証・改良	
		RDS触媒特性解析	RDS触媒設計技術開発(脱硫、脱窒素、脱CCR)			RFCC原料最適化検討	
		RDS偏流解析要素技術開発		RDS偏流解析モデル開発・検証・改良			
		RDS触媒劣化指標の検討		触媒劣化予測モデル開発			
	アスファルテン凝集制御技術開発	MCAM技術適用検討(減圧残油水素化分解装置、減圧残油溶剤脱れき装置)				予測手法改良	
		アスファルテン凝集理論解析(官能基評価、凝集構造検討)				凝集モデル作成	
補助	1303 RDS/RFCC全体最適処理技術開発	CFDモデル開発・触媒システム探索(ラボ実験)	システム選定(ベンチ実験)	実証運転①最適化検討	実証運転②開発総括		
	1305 非在来型原油および残渣油の2次装置反応性解析	実験装置設計・製作	反応評価・解析・モデリング・データベース構築				
	1306 脱れき油(DAO)処理に特化したRDS触媒システムの構築	脱メタル触媒層の性能向上	脱硫触媒層の性能向上	高抽出率DAOの処理技術開発	実機検証		
評価時期				ステージゲート審査 中間評価			終了時評価

(2) 資金配分

表 5－2 資金配分

(百万円)

研究開発項目	2016 年度	2017 年度	2018 年度	2019 年度	2020 年度	合計
高効率な石油精製技術の 基礎となる石油の構造分 析・反応解析等に係る研 究開発事業（委託）	549	460	433	430	450	2,322
高効率な石油精製技術に係 る研究開発支援事業（補 助）						
事務管理費	50	22	21	18	21	132
(a) ブタンの脱水素による ブタジエン製造技術の開発	133	28	34	-	-	195
(b) 先進的膜分離による高 付加価値品回収技術開発	67	55	84	-	-	206
(c) RDS/RFCC 全体最適処理 技術開発	67	62	111	50	50	340
(d) 劣質原油処理における 腐食機構の解明と対策	16	12	9	-	-	36
(e) 非在来型原油および残 渣油の 2 次装置反応性解析	148	275	91	35	65	615
(f) 重質残渣油の R F C C 原料化のための R D S 触媒 システム開発	90	19	95	135	85	425
(g) 重質油処理における機 器閉塞機構解明及び対策技 術開発	95	91	50	-	-	236
計	1,215	1,025	929	668	670	4,508

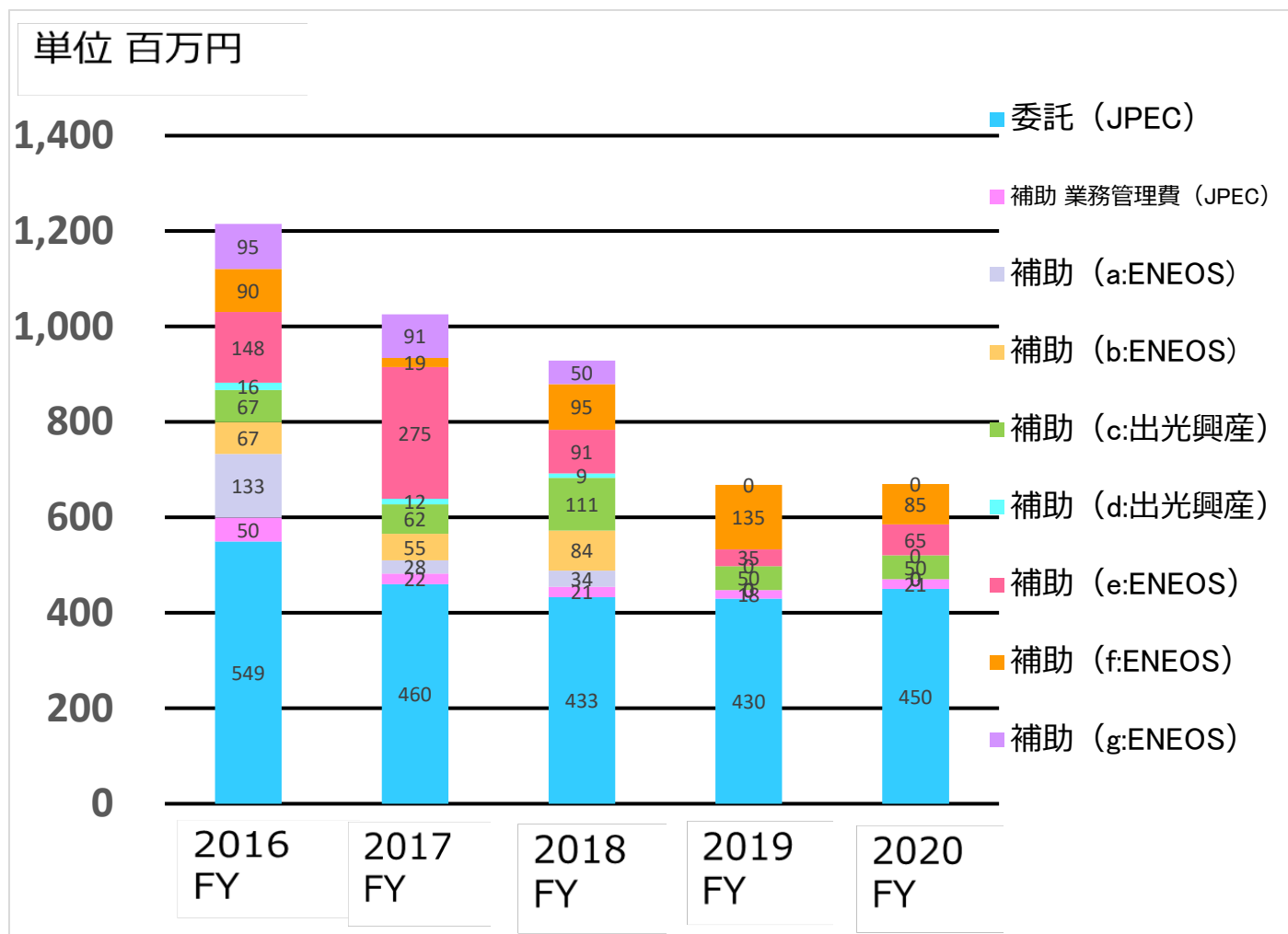


図 5 - 1 資金配分

(3) 研究開発の実施・マネジメント体制

本事業は外部有識者からなる①「採択・評価委員会」を設置し、年2回程度研究開発状況を報告し、評価および継続審査を行った。

委託事業で基盤技術開発を行っている JPEC と、補助事業でより実用的なテーマの技術開発を実施している事業者との連携を図り、ペトロリオミクス技術の実用化を加速するため、⑥「事業推進連携会議」を組織し、分析結果の提供や研究成果の共有を図った。

また（一財）石油エネルギー技術センター（JPEC）では、事業の適切な管理を行うために、基盤技術開発において、外部有識者（産官学において本事業推進に関する知見・経験を有する者）で構成される②「ペトロリオミクス研究・技術開発委員会」を組織し、年3回会議を開催し、適切な助言、指導を受けながら事業を推進した。非在来型原油成分分析技術については、石油会社5社から委員を選出し、評価する原油の選定・調達に関する支援や評価法に関する助言を得て研究を推進する③「非在来型原油研究会」を組織した。RDS/RFCC 全体最適化技術開発においては石油会社、エンジニアリング企業、大学などの委員から開発方針に対する助言を得て研究を推進する④「RFCC 反応モデル開発研究会」を組織した。

シーズ発掘事業においても、外部有識者により構成された⑤「採択・評価会議」にて進捗状況を審査の上、年度ごとにテーマの継続可否を判断した。

それぞれの研究開発の実施・マネジメント体制等や委員会、研究会体制等は、図5-2、図5-3、図5-4に示す。

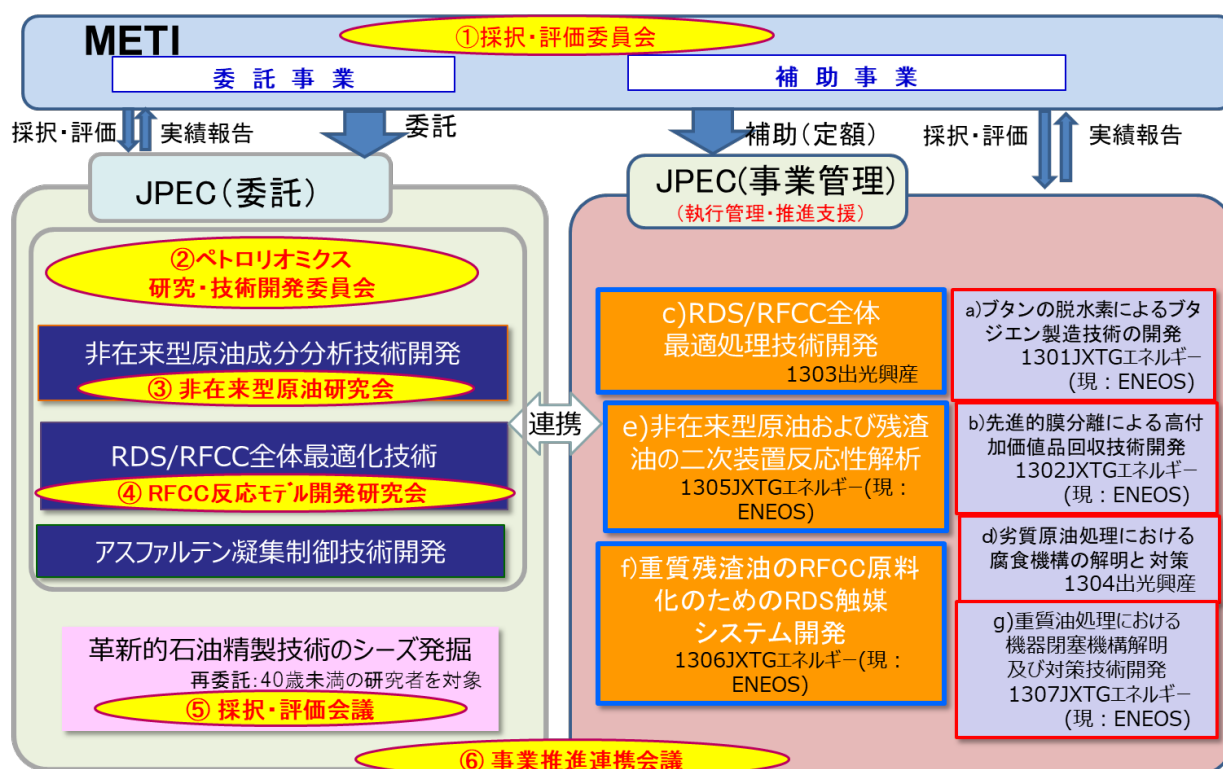


図5-2 研究開発の実施・マネジメント体制等

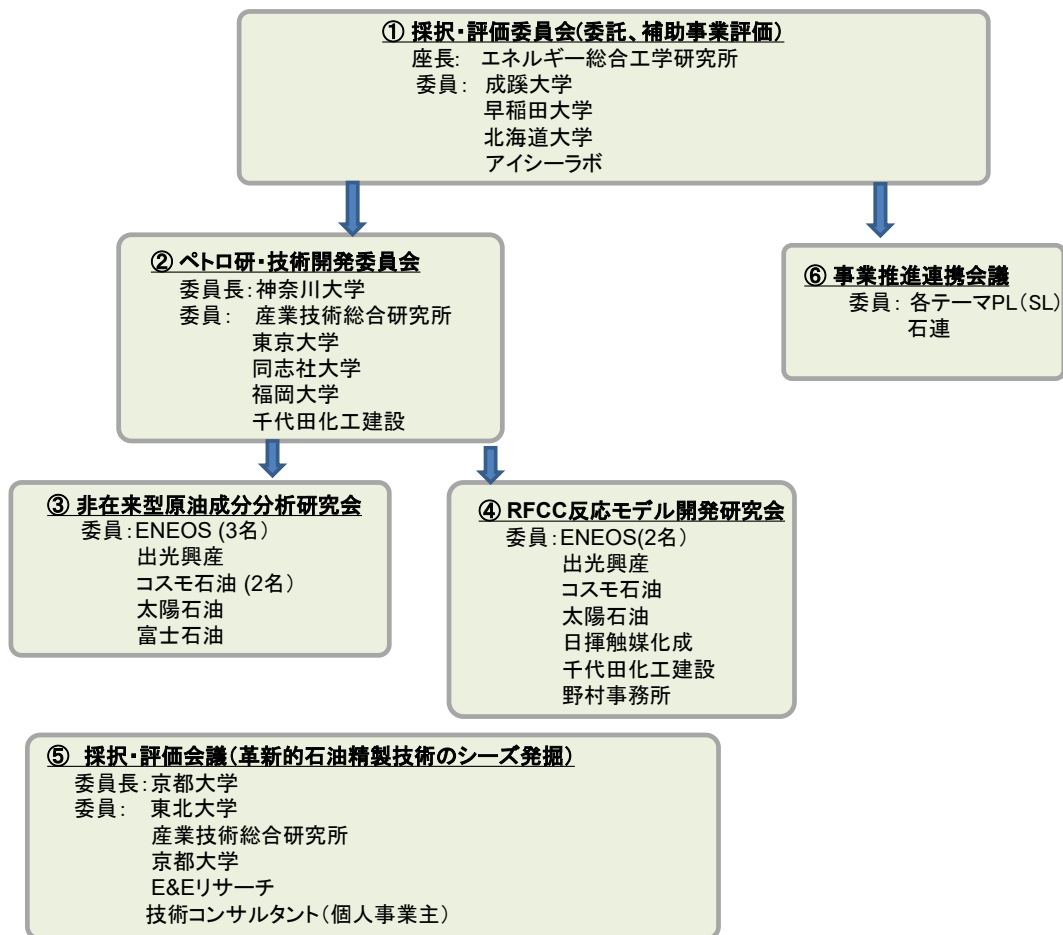


図 5 - 3 委員会、研究会体制等

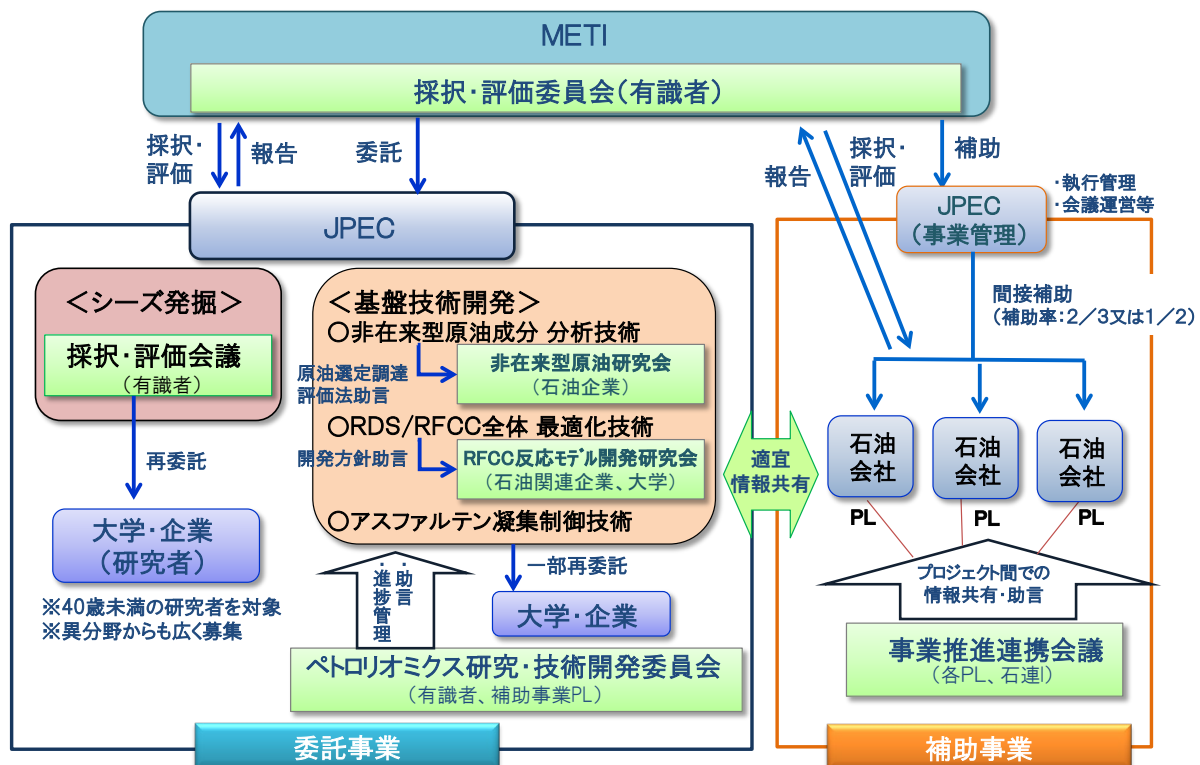


図 5 - 4 研究開発の実施・マネジメント体制等

（４）知財や研究開発データの取扱い

ペトロリオミクス技術は、重質油留分の詳細組成構造解析技術を始めとした基盤技術、及び基盤技術で得られた結果を活用して現場課題解決に繋げるための５つの適応技術からなっているが、これらの中でも、「詳細組成構造解析技術」はペトロリオミクス技術体系の入口であり、そこから得られた重質油を構成する分子構造と組成データを反応解析や物性推算を行う適用技術と繋げるためにどのように扱うかがペトロリオミクス技術体系のポイントである。

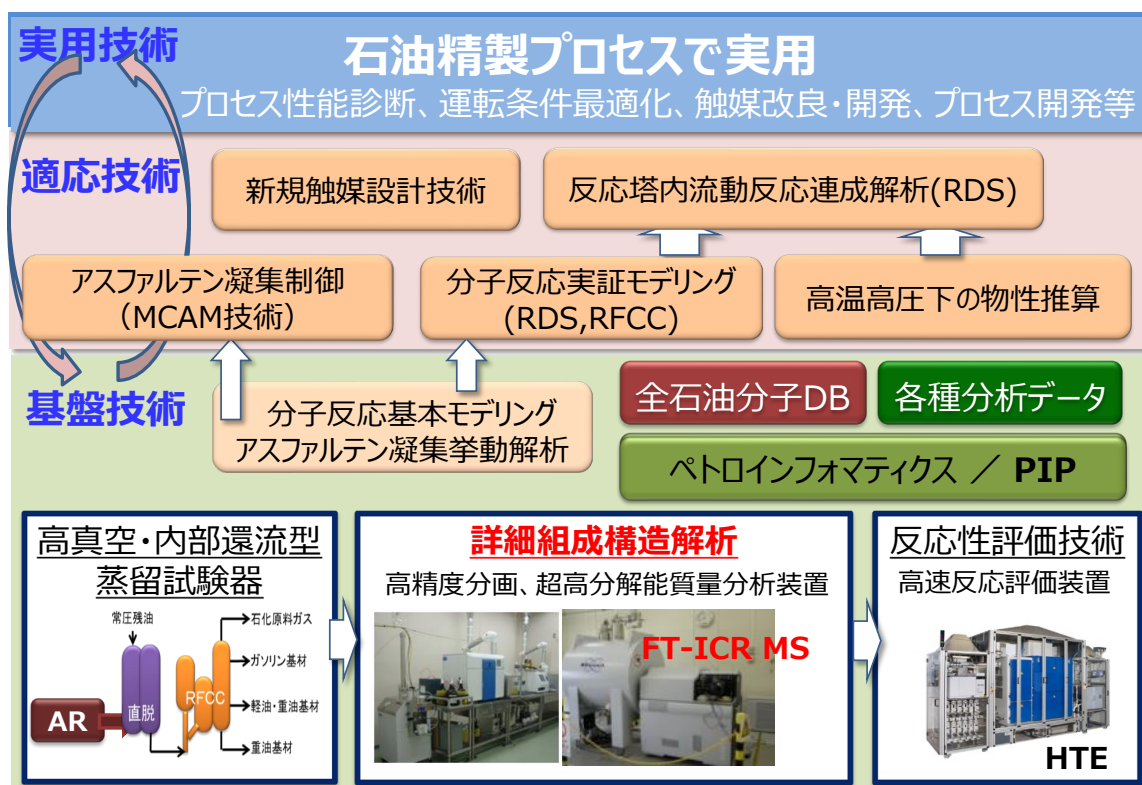


図５－５ ペトロリオミクスの技術体系

このようにペトロリオミクス技術の体系が明確になり、事業期間後半では石油会社での活用が想定される段階に入ったことから、事業期間前半ではペトロリオミクス技術の根幹である「基盤技術」、後半では「適用技術」を中心に特許を出願し、ペトロリオミクス技術体系全般をカバーする特許網を構築すべく取り組んできた。また、JPEC では特許出願に関する基本方針を定め、この方針に従い石油会社等と連携し特許出願を実施してきた。

<特許出願に関する基本方針（概要）>

（１）JPEC は出願すべき発明の選択と出願を迅速に行う

技術開発は日進月歩であり、ペトロリオミクス技術開発はまさにその様相を呈している。国委託事業は国民に開放することが期待される一方、優れた技術開発力を備える海外ライセンサー等によってペトロリオミクス基盤・適応技術開発の成果を浸食されることがないよう技術情報の公開は知財権の確保を優先事項として慎重に行う必要がある。この観点から JPEC は特許出願すべき発明を遅滞なく選択しておき、発明状況を見極めて迅速に出願する。

（２）JPEC は知財価値を事業参加会社や共同研究者等に積極的に正しく伝える

ペトロリオミクス技術開発は基盤・適応・実証と広範であり、それぞれの技術開発もかなり高度なレベルにあることから、石油会社等がペトロリオミクス技術開発を理解し、開発技術（発明）・知財の経営貢献を適切に判断して頂く一助として、JPEC は「知財情報連絡会」を適宜開催し、情報提供を積極的に行う。

（３）JPEC は出願特許の権利化を企業と共同で行う（単独では行わない）

ペトロリオミクス委託事業は国のエネルギー安定供給に資するために行われるが、開発技術の大半は石油関連企業の経営活動を通じて社会に還元されることから、特許の審査請求・権利化は原則として企業の意思を尊重し、企業と共同で行うことを前提とする。

6. 事業アウトプット

(1) 共通指標としてのアウトプット

表 6-1 開発技術の発表数及び特許出願数

事業アウトプット指標：開発技術の発表数及び特許出願数		
指標目標値（計画及び実績）		
2016 年度（事業開始）	計画：－	実績：－
2018 年度（中間評価）	計画：30 件	実績：51 件
2020 年度（最終年度）	計画：40 件	実績：41 件

(2) 研究開発項目としてのアウトプット

表 6-2 ① ペトロリオミクス委託研究開発（JPEC）

研究開発項目	中間目標（2018 年）	最終目標（2020 年）	設定（変更）理由
①-1 非在来型原油成分分析 技術開発	非在来型原油に適した 減圧蒸留手法確立	非在来型原油に適した 減圧蒸留手法確立	現行の ASTM 減圧蒸留 試験器を用いた場合、 重質成分の含有率が高 い非在来型原油等では 精度が低くなるため、 非在来型原油の分析に 適した減圧蒸留法を開 発する。
	反応性評価手法確立	非在来型原油常圧残油 (AR) の脱硫・脱窒素反 応性を AR 分子構造か ら予測する手法の構築	重質留分の寄与が大き くなる非在来型原油や 超重質油の評価では、 二次装置における反応 性に関する情報が必要 不可欠である。
	原油混合特性評価手法 確立	多成分系凝集モデル (MCAM) の活用による原 油混合時のスラッ ジ析出量予測技術の 確立	異種原油混合時のスラ ッジ発生メカニズムは 解析されておらず、原 油種の組合せ等による 差異も解明されていな い。 非在来型原油処理拡大 においてスラッジ発生 はボトルネックとなる 恐れがある。

研究開発項目	中間目標（2018 年）	最終目標（2020 年）	設定（変更）理由
①－2 RDS（重油直接脱硫装置）及び RFCC（残油接触分解装置）の全体最適化技術開発	RFCC 得率予測モデルの構築	汎用性のある RFCC 得率予測モデルの構築及び RFCC にとって好適な RDS 生成油(DSAR) 組成の明確化	DSAR 組成が異なると RFCC での分解反応に違いが生じ、製品得率変化が予想されるため、反応機構の解明が重要となる。
	RDS 触媒設計技術の検証と積層触媒システムの提案	RDS 触媒の反応特性を制御し、RFCC にとって好適な DSAR を実現する触媒設計技術の確立	RFCC/RDS 最適化のために RFCC にとって好適な DSAR を実現出来るような触媒設計技術を構築する。
	流動と反応変化を連成させた RDS 偏流解析モデルの構築	実機の偏流現象が再現可能な RDS 偏流解析モデルの構築	RDS 装置では偏流やホットスポット現象が発生するが、RDS のパフォーマンス低下や運転制約に繋がるため、実装置の偏流等のモデル構築により対応する。
	RDS 基本モデルに触媒劣化を組込んだ RDS 劣化モデルの構築と検証	RDS 触媒の劣化状態を予測する手法の構築	RDS 装置は、運転後期には触媒劣化による反応温度の急激な上昇が起き、反応条件調整を試行錯誤的に行っている。 そこで、触媒劣化に伴い進行する RDS の反応性の低下を予測するモデルを構築することを目標とした。

研究開発項目	中間目標（2018 年）	最終目標（2020 年）	設定（変更）理由
①－3 アスファルテン(As)凝集 制御技術開発 ※MCAM: 多成分系凝 集モデル Multi Components Aggregation Model	①セグメント生成予測、 溶剤脱れきプロセスで の MCAM の技術検証	①減圧残油水素化分解 プロセス及び溶剤脱れ きプロセスにおける MCAM 技術検証結果を 踏まえた活用指針の策 定	装置トラブルの原因とな っている原油中の As 分 子の凝集を解決するた め、前事業で開発した MCAM を改良する。石 油精製プロセスでの凝 集状態を予測可能とす ることで、MCAM を As 凝集問題の原因解明汎 用ツールとすることを目 標とする。
	②凝集・析出に影響す る部分構造の明確化	②MCAMを汎用性のあ るツールに仕上げてい くために必要となる改良 点の抽出	
①－4 革新的石油精製技術の シーズ発掘	①テーマの採択と実施 （継続を含め 5 件程 度）	①新たにテーマの採択 と実施（継続を含め 10 件程度）	国内に研究拠点を持つ 大学や研究機関に所属 する満 40 歳未満を対象 者に公募を行い、石油 分野のみならず他分野 の研究開発を実施す る。このための採択数 を目標とする。

表 6－3 ②1303「RDS／RFCC 全体最適処理技術開発」

研究開発項目	中間目標（2018 年）	最終目標（2020 年）	設定（変更）理由
RDS/RFCC 全体最適処理技術開発	①温度偏差解析に必要な流動シミュレーション技術（マクロ SIM、ミクロ SIM）を開発する。 ②RFCC 高分解性と RDS 触媒活性安定性を両立する RDS 触媒システムを構築する。 ③上記 RDS で製造された DSAR 性状に対応した RFCC 触媒のコンセプトを考案する。	①開発 SIM に基づく触媒グレーディング技術を構築し、その有用性を実機で実証する。 ②新規 RDS 触媒システムを構築し、その優位性を実機で実証する。 ③DSAR 性状に適合した触媒システムを選定し、その有効性を実機で実証する。	①RDS はトリクルベッドであり、その流動を解析しシミュレーションするためには、従来困難であった複雑な気液固 3 相流の CFD モデルを開発する必要がある。 ②ペトロリオミクスを活用した DSAR の詳細組成構造解析により、RFCC での分解に寄与する成分と RDS の触媒劣化を引き起こす成分を区別可能となり、それらを踏まえた分子レベルの組成制御により RFCC 高分解性と RDS 触媒活性安定性を両立する触媒システムを構築できる。 ③更に、DSAR の分子サイズ分布を踏まえた RFCC 触媒とすることで、RDS/RFCC 全体最適処理技術を確立できる。

表 6－4 ③1305「非在来型原油および残渣油の 2 次装置反応性解析」

研究開発項目	中間目標（2019 年）	最終目標（2021 年）	設定（変更）理由
①非在来型原油および残渣油の 2 次装置反応性解析	非在来型原油を含む原油の 2 次処理装置での反応性評価のデータベース数:3 原油	非在来型原油を含む原油の 2 次処理装置での反応性評価のデータベース数:7 原油	－

表 6－5 ④1306 「重質残渣油のRFCC原料化のためのRDS触媒システム開発」

研究開発項目	中間目標（2019 年）	最終目標（2021 年）	設定（変更）理由
脱メタル触媒システムの構築	SDA 抽出率を 50%から 70%に増加した場合に、1 年間安定運転できる脱メタル触媒システムの構築	構築した脱メタル触媒システムでの 1 年運転（実機による検証を含む）	抽出率が上がると、DAO 中のメタル分などの不純物が増加し、RDS、RFCC の触媒劣化、性能低下を引き起こす。したがって、適切な脱メタル触媒を RDS 装置で用いることで VR 留分の高付加価値化が可能となる。
脱硫触媒システムの構築	脱硫触媒の必要機能設定	構築した脱硫触媒システムでの 1 年運転（実機による検証を含む）	RFCC 触媒は窒素化合物により活性点が被毒され、性能低下が起こる。DAO 中の窒素分は従来の AR と比べると、RDS において除去されにくい。そこで、脱窒素活性の高い触媒システムが望まれる。
80%抽出率 DAO の処理技術確立	－（計画変更）	SDA の抽出率を 80%まで上げて処理可能な RDS 処理用触媒システムを開発する。	当初計画していた抽出率 70%の DAO 処理技術の確立にほぼめどが立てられたことから、期中に計画変更した。

(2) 研究開発の成果

表 6-6 ① ペトロリオミクス委託研究開発 (JPEC)

研究開発項目	最終目標 (2020 年度)	成果・意義	達成状況	未達の原因分析 / 今後の見通し
①-1 非在来型原油成分分析技術開発	a) 非在来型原油に適した減圧蒸留手法の確立	内部還流機構を設けた高真空・内部還流型減圧蒸留装置を開発した。これにより最高留出温度が従来より約 40℃高い 572℃となり、これまで分留出来なかった高沸点留分まで分留出来るようになったことから、超重質原油等の詳細構造解析や反応性評価を行うための基盤技術が確立出来た。	達成	—
	b) 非在来型原油常圧残油 (AR) の脱硫・脱窒素反応性を AR 分子構造から予測する手法の構築	RDS 分子反応モデルを用いて反応速度論的に AR の脱硫率及び脱窒素率を実測値との絶対誤差 10%以内で予測できる手法を開発し、石油会社から原油調達可否の判断に資するレベルと評価頂いており、非在来型原油の利用拡大に向けた基盤技術が確立出来た。	達成	—
	c) 多成分系凝集モデル (MCAM) の活用による原油混合特性評価技術の確立	JPEC が開発した MCAM 技術を用いることにより、原油混合時のスラッジ析出挙動を分子レベルで予測する技術を開発した。 スラッジ析出の予測精度については、石油会社から原油調達可否の判断に資するレベルと評価頂いており、非在来型原油の利用拡大に向けた基盤技術が確立出来た。	達成	—

研究開発項目	最終目標（2020 年度）	成果・意義	達成状況	未達の原因分析/ 今後の見通し
①－2 RDS（直接脱硫装置）及びRFCC（残油接触分解装置）の全体最適化技術開発	a)汎用性のあるRFCC得率予測モデルの構築及びRFCCにとって好適なRDS生成油(DSAR)組成の明確化	RFCCの反応モデル、並びに反応モデルに基づく汎用性のあるRFCC得率予測モデルを開発した。予測精度は誤差率10%以内であり、石油会社が求める精度レベルに到達した。特にCokeの予測精度は絶対誤差1wt%以内であり、同様の精度の技術はないと考える。	達成	－
	b)RDS触媒の反応特性を制御し、RFCCにとって好適なDSARを実現する触媒設計技術の確立	RDS生成油中のCCR量を低減するためにはコア重量%や多環芳香族コア量の低減が重要であること、またこの反応特性を示す触媒の最適組成パラメータを、ペトロリオミクス技術とサポートベクターマシンより決定する技術を開発した。本成果は触媒会社からも高く評価され、従来の触媒開発より迅速・効率的に行うことができる。	達成	－
	c)実機の偏流現象が再現可能なRDS偏流解析モデルの構築	開発した偏流解析モデルについて、実機の触媒グレーディング、及び反応器内の固化進展が流動挙動に及ぼす影響への適用、RDS装置の偏流に与える影響を表現出来ることを確認した。また本モデルではフォーミング等のRDSの流動状態に関する新たな概念を導入した。	達成	－
	RDS触媒の劣化状態を予測する手法の構築	RDS分子反応モデリングと原料油の詳細構造解析から、コア反応率の変化を推算しRDS触媒の劣化度を予測する技術を開発した。 本技術を用いることにより試験無しで触媒劣化度合いの予測が可能となった。	達成	－

研究開発項目	最終目標（2020 年度）	成果・意義	達成 状況	未達の原因分析 /今後の見通し
①－3 アスファルテン 凝集 制御技術開発	a)減圧残油水素化分解 プロセス及び溶剤脱れき プロセスでの MCAM の 技術検証と活用指針の 策定	適切な補正因子や亜臨界条件 における溶剤の HSP の導入等 により、MCAM を使って、減圧 残油水素化分解プロセスのセ ジメント量の予測、溶剤脱れき プロセスの抽出物予測が出来 た。また、トルエン不溶解分が 多く詳細組成構造解析におい て不検出成分が多い試料に MCAM を適用する場合、適切 な補正因子の導入が必要であ ることを見出した。 重質油の組成・構造情報に基 づく MCAM 解析により、非常に 複雑な As 凝集に起因する課題 の現象理解が深まり、より効果 的な解決策の立案に繋がるこ とが期待される。	達成	－
	b)MCAMを汎用性のある ツールに仕上げていくた めに必要となる改良点 の抽出	As 凝集に大きく寄与する高極 性は、フェノール、カルボン酸 等の官能基に起因すること を見出した。また、As の凝集状 態を観察・定量方法について 世界初と言える手法を開発し た。これらの結果を踏まえ、 MCAM に高極性官能基を取り 込むこと及び高次凝集体を取 り扱えるようにすることで、石 油精製プラントの熱交換器で問 題となっている汚れ問題等へ の適用が期待できる。	達成	－
①－4 革新的石油精製 技術のシーズ発 掘	新たにテーマの採択と実 施（継続を含め 10 件程 度）	平成 28 年度 6 テーマ、平成 29 ～30 年度は 5 テーマ採択し研 究を実施した。平成 31～令和 2 年度は新たに 5 テーマを採択し 研究を実施した。	達成	－

表 6-7 ②1303「RDS／RFCC全体最適処理技術開発」

研究開発項目	最終目標（2020 年度）	成果・意義	達成状況	未達の原因分析/ 今後の見通し
RDS/RFCC 全体最適処理技術開発	①流動やスケールの捕捉に対する触媒形状やサイズの影響を解析できるマイクロ SIM と、リアクター全体の流動状態をシミュレーションできるマクロ SIM の二つの CFD モデルを開発し、それらを用いて触媒グレーディング技術を開発する。 ②ペトロリオミクス技術を活用して DSAR の詳細組成を把握し、それを軸に RDS と RFCC を連成して反応を解析することで、RDS/RFCC トータルで最大活用・最大効率運転を可能とする触媒システムを構築する。	①2 種類の CFD モデル（マイクロ SIM・マクロ SIM）を開発することで従来は困難であった複雑な気液固 3 相流の流動解析シミュレーションを実現した。これにより触媒形状やグレーディングの影響を解析とリアクター全体の流動状態の把握を可能とし、固化・偏流・ホットスポットを回避した安定運転に繋げた。 ②ペトロリオミクスを活用した詳細組成構造解析により、RFCC で分解し易い DSAR の製造と RDS の触媒劣化抑制を両立するための組成制御方法を見出すと共に、DSAR の分子サイズ分布を踏まえた RFCC 触媒とすることで、RDS/RFCC 全体最適処理技術を確立し、RDS 触媒寿命の維持と RFCC 反応性の向上を果たした。	達成	—

表 6－8 ③1305「非在来型原油および残渣油の 2 次装置反応性解析」

研究開発項目	最終目標（2020 年度）	成果・意義	達成状況	未達の原因分析/ 今後の見通し
① 非在来型原油 および残渣油の 2 次装置反応性 解析	非在来型原油を含む原油（7 原油）の 2 次処理装置での反応性評価データベース作成	目標通りデータベース作成を完了した。 これにより、製油所での原油選択のバリエーションを増すことができ、原油選択の改善による競争力強化が見込まれる。	達成	今後の見通し： 原油選択スキームの改善

表 6－9 ④1306 「重質残渣油の R F C C 原料化のための R D S 触媒システム開発」

研究開発項目	最終目標（2020 年度）	成果・意義	達成状況	未達の原因分析/ 今後の見通し
脱メタル触媒システムの構築	構築した脱メタル触媒システムでの 1 年運転（実機による検証を含む）	SDA 抽出率 70%における DA0 の処理に特化した脱メタル触媒システムを構築し、実機 RDS 装置へ適用することで、1 年間安定運転可能であることを検証した。	達成	－
脱硫触媒システムの構築	構築した脱硫触媒システムでの 1 年運転（実機による検証を含む）	SDA 抽出率 70%における DA0 の処理に特化した脱硫触媒システムを構築し、実機 RDS 装置へ適用することで、1 年間暗転運転可能であり、かつ実機 RFCC における性能向上を検証した。	達成	－
80%抽出率 DA0 の 処理技術確立	SDA の抽出率を 80%まで上げても処理可能な RDS 処理用触媒システムを開発する。	SDA 抽出率 80%における DA0 を処理するために必要な触媒性能を数値化し、触媒システムの見直しに加え、各種プロセス条件の見直しにより、運転可能となる条件を設定できた。	達成	－

＜成果の補足説明＞

①-1 非在来型原油成分分析技術開発

a) 高真空・内部還流型減圧蒸留技術

原油の高沸点留分を適正に評価するための蒸留法として、従来法より真空度を高め、内部還流機構を設けた高真空・内部還流型減圧蒸留器を新たに開発した。この蒸留器は従来法に比べて約40℃高い572℃までの分留が可能で、各留分に含まれる成分の重複が少ないことが確認できた。この蒸留装置を用い、入手した原油を評価した結果を図6-1に示す。高沸点領域における留分分布が油種間で異なり、特に重質原油の高沸点 VGO 留分（VGO-3）の比率に差異が見られた。

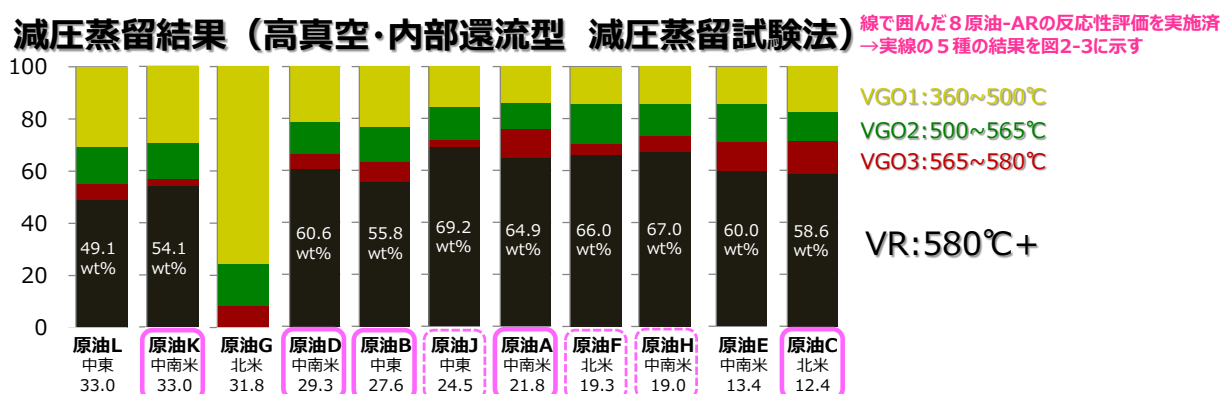


図6-1 高真空・内部還流型 減圧蒸留方法による高沸点領域における留分分布

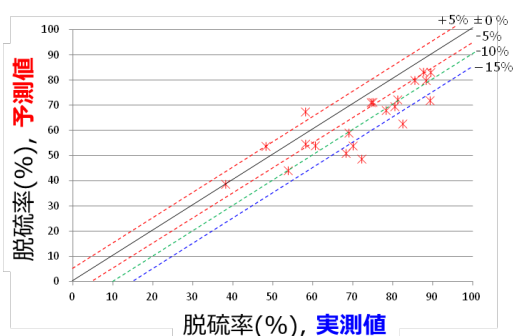
b) 反応性評価方法の確立

重質成分が多い超重質原油の残渣油は、粘度が非常に高く、高速反応性評価装置（HTE）で原料供給ができず、反応性評価が困難であった。そこで、HTE に重質原料を供給するための装置改造を行い、API20 以下の原油であっても反応性（脱硫・脱窒素）評価が可能となった。

そこで、JPEC が入手した原油のうち 16 原油の AR について 3 つの反応温度で HTE による反応性評価試験を行い、RDS 分子反応モデルにより反応速度論的に AR の脱硫率および脱窒素率が予測する手法を開発した。異なる 7 原油の AR を用いて予測式の検証を行なった結果、脱硫・脱窒素とも絶対誤差は 10%未満となり、原油調達の可否判断に資するレベルを達成した。

＜脱硫率＞

絶対誤差； 9.8% (全21点平均)



＜脱窒素率＞

絶対誤差； 8.8% (全21点平均)

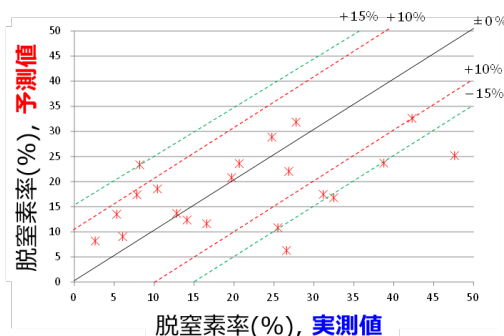


図6-2 AR の脱硫率及び脱窒素率の予測モデル検証結果

また、実際の石油精製プロセスを想定し、輸入量が最も多い在来型原油由来の AR に輸入実績が殆どない 4 種類の未利用原油由来の AR を混合し、混合 AR への適用について検証した結果、絶対誤差は 10%未満であり、開発手法が混合 AR の反応性予測にも適用可能であることが分かった。

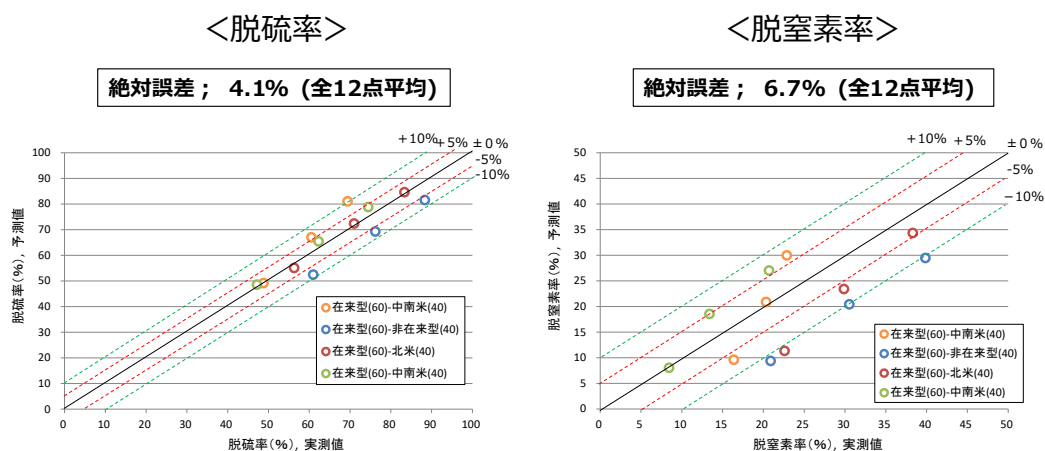


図 6－3 混合 AR 脱硫率・脱窒素率予測結果

c) 原油の混合特性評価技術の確立

非在来型原油等の未利用重質原油と在来型原油を混合した際の相溶性（スラッジ析出の有無）を実験的に簡易評価する手法を選定し、国内製油所に適する組み合わせ（Arabian Light 同等以上である $API \geq 34$ 、硫黄分 $< 1.9wt\%$ 、ドライスラッジ量 $< 0.02wt\%$ ）を 21 件見出した。この検討において析出するスラッジ量は混合する原油の組合せにより多様な挙動を示すことが確認されたが、これは、主に重質原油由来のアスファルテン量とアスファルテン分の溶解性指標である Wiehe パラメータの関係が原油の組み合わせにより変化することが原因と推測された。（図 6－4）

また、JPEC が開発した多成分系凝集モデル MCAM を活用し、重質原油と軽質原油を混合した際の相溶性を評価する手法を検討した結果、原油調達可否の判断に資するレベルでスラッジ量を予測出来た。（図 6－5）

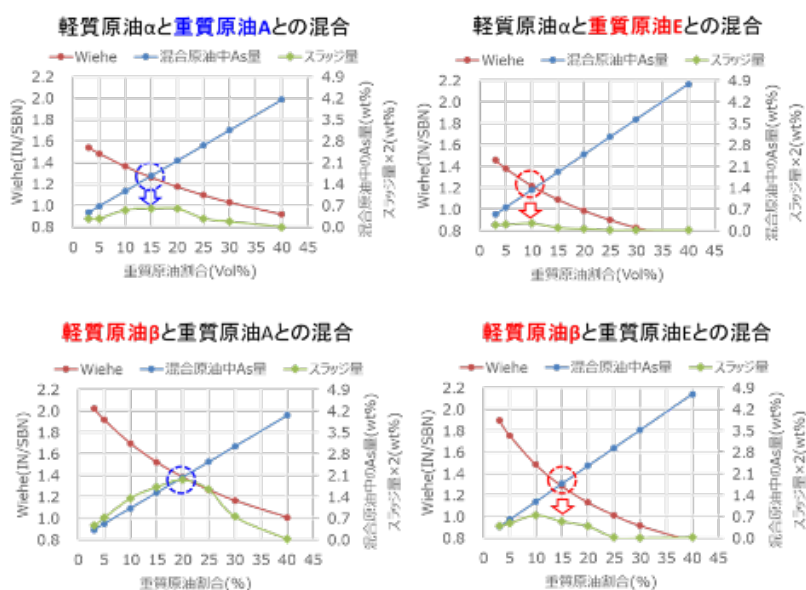


図 6－4 原油組み合わせによるスラッジ析出挙動の変化

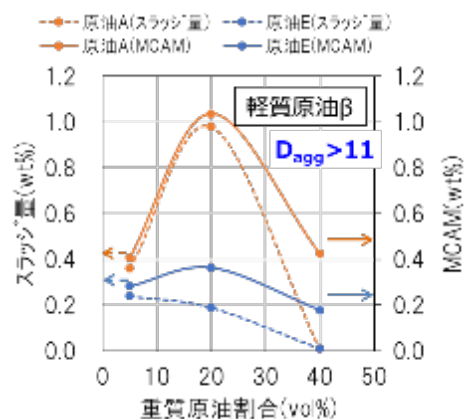


図6-5 軽質原油βと重質原油(A、E)を混合した時MCAMによるスラッジ予測結果

①-2 RDS（直接脱硫装置）及びRFCC（残油接触分解装置）の全体最適化技術開発

a) RFCC 得率予測モデルの構築

RFCCの原料油であるRDS生成油(DSAR)がRFCCでどのように分解されて軽質油や中間留分に移行するかを分子レベルで解析することにより、RFCC得率予測モデルを開発するとともに各留分の得率向上に適したDSAR組成の推定に取り組んできた。

RFCC得率予測モデル開発においては、原料油、反応温度、触媒／オイル、触媒性状、Ni量が異なる条件でベンチ試験を行い、原料油及び生成油に含まれる分子構造を解析することにより生成油(Gas～HCO)の反応パスを解明し、各留分得率の予測モデルを作成した。また、実機運転で重要なコーク生成に関しては、コア構造が主に関与し、側鎖と脂肪族は反応初期で分解されコーク生成に関与しないこと、及びHCO留分となるかコークになるかのコア環数境界線が5～7環にあることを明らかにし、これらを踏まえたコークの得率予測モデルを作成した。

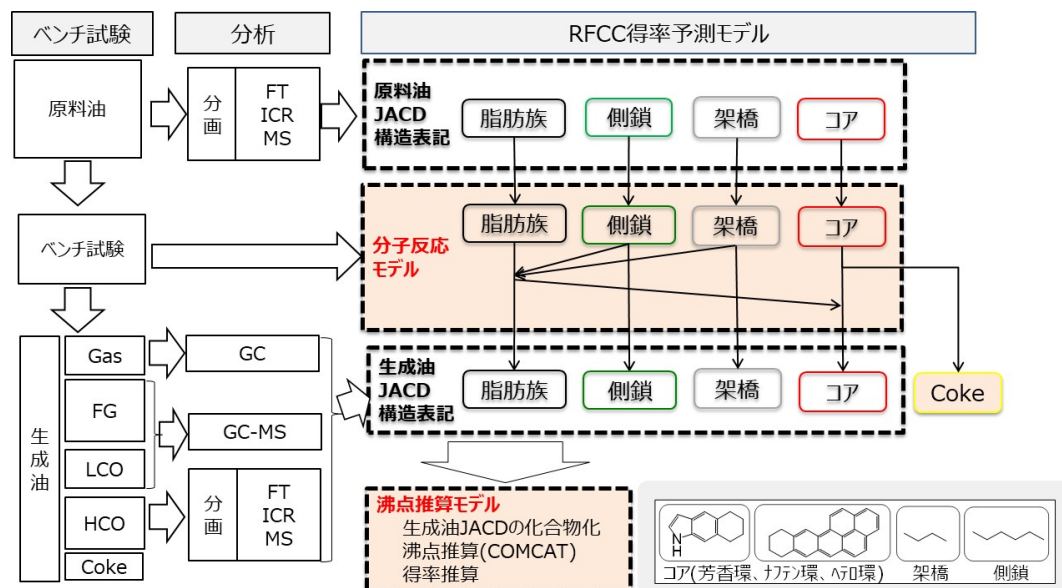


図6-6 RFCC 得率予測モデルの概要

開発した得率予測モデルを用いてこれまで実施したベンチ試験の各留分得率を推算し、実測と比較した結果(図6-6)、両者は良い一致を示した。また、他社ベンチ試験結果を用いた検証を行った結果、傾向は概ね一致していたが、装置の違いを反映した補正が必要であることが分かった。

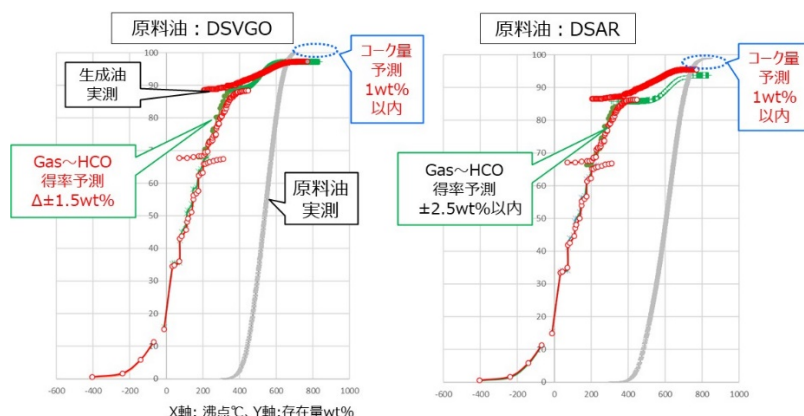


図 6-7 RFCC 得率予測モデルの検証結果

また、RFCC における反応解析より、原料油中に含まれるコア構造ではアロマ環は反応せずナフテン環が開環すること、及び多環コア（コア環数 5~7）がコーク生成に寄与していることから、RDS 装置ではアロマ環を可能な限り水素化すること及び多環コアの低減が必要であることが示唆された。一方、側鎖はほぼ全て切断され Gas~FG 留分に移行することから、RDS 装置では可能な限り側鎖側を切断しないことが RFCC 生成油得率の向上に有効であることが示唆された。

b) RDS 触媒設計技術の確立

RDS は AR の脱硫が主な役割であるが、それに加えて FCC 及び RFCC の原料として分解性に優れた DSAR を生産できる事が望ましい。従って、RDS 触媒には脱硫に加え、CCR 量を低減させることが求められるが、RFCC では主に側鎖の切断反応・ナフテン環の開環反応が進行し、多環芳香族はコークに移行すると考えられることから、RDS 触媒には芳香環を極力水素化してナフテン環とし、同時に多環芳香族の低減により CCR を低減することが必要であることが分かった。（図 6-8）

そこで、RDS 反応試験の生成油詳細組成構造解析結果とサポートベクターマシン(SVM)を組み合わせ、脱 CCR 反応の促進に寄与する触媒パラメータを見出した。更に、SVM によりそれらのパラメータの最適組み合わせ量を明らかにし、高脱 CCR 触媒に求められる反応特性と最適組成パラメータを決定する RDS 触媒設計技術を確立した。

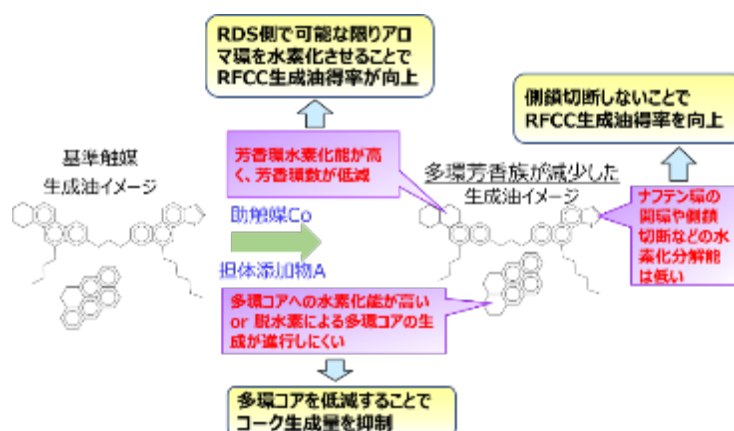


図 6-8 RFCC の前処理として RDS 触媒に求められる反応特性

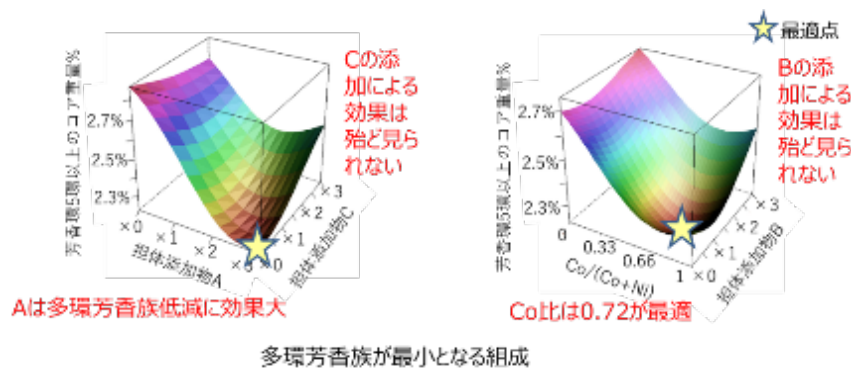


図 6-9 SVM による触媒パラメータ最適組合せ比率検討結果

c) RDS 偏流解析モデルの構築

RDS 装置は高密度・高粘度の重質油と水素を流通し、固定床触媒上で反応させるため、偏流やホットスポットといった現象が発生するが、その発生原因の把握ができていないことから、装置内の流動状態を可視化すべく触媒粒径・形状の流動への影響や触媒層内に偏流を引き起こす固化部が発生した際の流動状態を解析するための流動解析モデル、反応塔内での重質油の物性を推算するための物性値推算モデル、および重質油の反応を連成するための RDS 反応モデルを開発した。

開発モデルを用いて実機における①触媒グレーディングの影響、②反応器内の固化進展が流動挙動に及ぼす影響を再現できるか検証した結果、流動解析モデルに RDS 触媒層におけるフォーミングの発生や、装置内での比較的緩い結合（ソフトコーク）の発生といった新しい概念を導入することによって、従来のシミュレーションでは再現できなかった現象（例：装置内差圧（ ΔP ）の急上昇）を再現できるようになり、開発技術の有用性を検証することが出来た（図 6-10）。

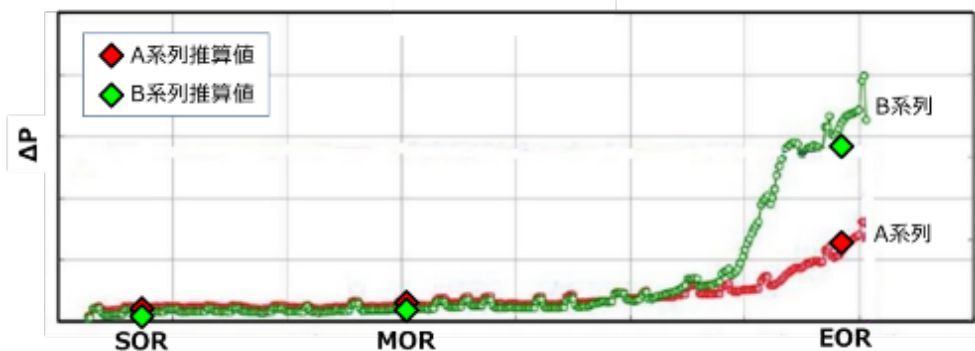


図 6-10 偏流解析モデルによる ΔP 推算値と実測値の比較

d) RDS 触媒の劣化状態予測手法の開発

ペトロリオミクス技術を用いた原料油の詳細構造解析から触媒劣化度合いが最も良く現れる化合物（コア）を抽出し、その化合物の反応性変化から RDS 触媒の劣化状態を予測する技術の開発を行った。まず触媒劣化度合いが最もよくあらわれる化合物を抽出するため RDS 触媒の寿命評価試験を解析した結果、硫黄化合物のコアの反応率と脱硫率はほぼ一致していた（図 6-11）ことから、コアの反応率を予測することで脱硫率が予測できることが示唆された。

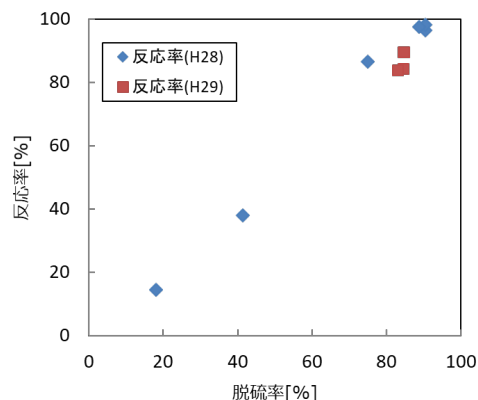


図 6－1 1 硫黄化合物のコア反応率と脱硫率

そこで、分子反応モデリングを用いて求めた硫黄を含む各コアの活性変化（頻度因子： A/A_0 ）と詳細構造解析より求めた原料油中の硫黄を含む各コアのモル分率を掛け合わせ、それらを合計することにより RDS 触媒の劣化度（硫黄化合物全体の反応率の変化）を予測する手法を開発した。

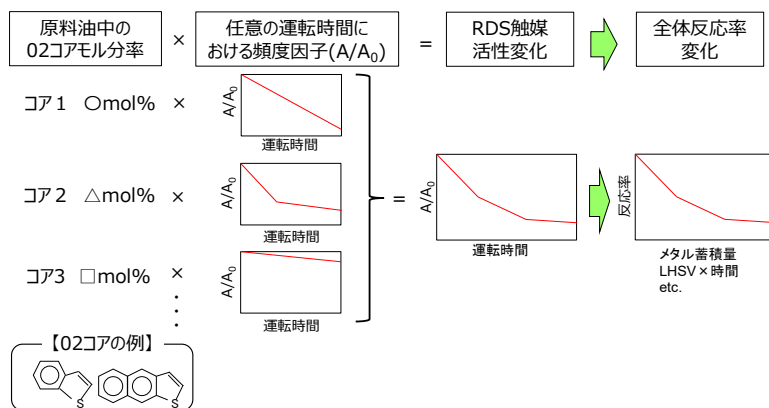


図 6－1 2 RDS 触媒の劣化度予測手法

開発手法についてベンチ試験結果を用いて検証した結果、実測値と予測値がほぼ一致したことから本手法のコンセプトが妥当であることが確認出来た(図 6－1 3)。なお、同じアプローチを硫黄以外の化合物にも適用することにより、劣化に伴う RFCC 原料油の組成変化を予測することは理論的には可能であり、RDS/RFCC の全体最適化に資する技術が開発出来たと考える。

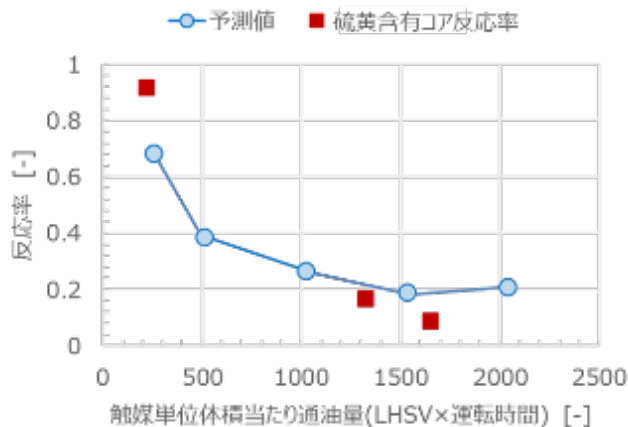


図 6－1 3 RDS 触媒劣化度の実測値と予測値

①－３ アスファルテン凝集制御技術開発

「重質油等高度対応処理技術開発事業(2011～2015 年度)」において、重質油成分の溶解・凝集・析出挙動を定量的に予測する技術として開発した多成分系凝集モデル（MCAM：Multi Components Aggregation Model）について、①MCAM を石油精製プロセスに多い高温・高圧プロセスでの検証を通じて凝集状態の予測や考察出来る技術に仕上げることに、及び②As 凝集・析出挙動に影響する因子を明確にすると共に、MCAM を As 凝集に起因する様々な問題の原因解明に適用可能なツールに仕上げていくための改良点抽出に取り組んだ。

a) MCAM 検証

MCAM の検証として、減圧残油溶剤脱れきプロセスの抽出物予測と減圧残油水素化分解装置でのセジメント析出予測を実施した。減圧残油溶剤脱れきプロセスの抽出物の成分予測結果を図 6－14 に示す。抽出油の実測値と MCAM で予測した成分を比較すると、いずれも縮合多環芳香族成分が除去され、分布も類似していることが確認出来た。また、溶剤脱れき装置での抽出率について MCAM 予測値と実測値を比較した結果、亜臨界条件における溶剤の HSP の導入等により実機の傾向を概ね再現出来たことから、MCAM が高温高圧条件での抽出物予測に適用出来ることが分かった。

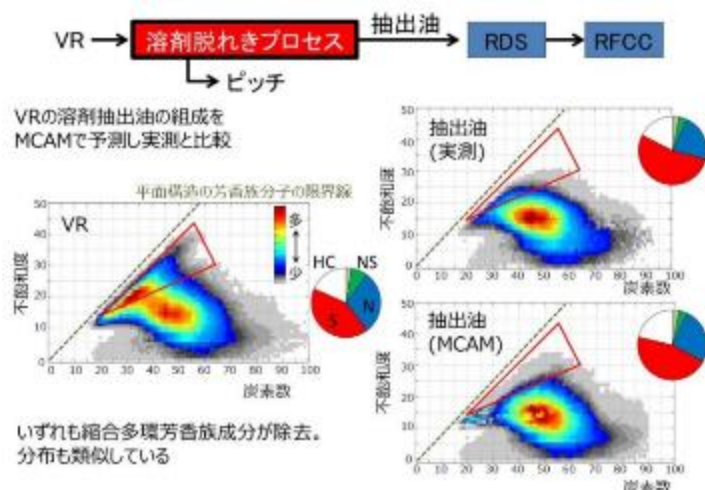


図 6－14 減圧残油溶剤脱れきプロセスの抽出物の成分予測

続いて、減圧残油水素化分解装置でのセジメント析出成分の予測結果を図 6－15 に示す。赤枠線内の成分は多環芳香族が縮合したものでセジメント析出に最も関与する成分と考えられるが、MCAM による予測結果、熱交析出物の分析結果とも縮合多環芳香族が主成分として検出され、セジメントとして析出しやすい成分を MCAM で予測出来ることが示唆された。そこで、MCAM によるセジメント析出量予測について検討を行ったが、精度よく予測するためには補正因子の導入が必要であることが分かった。これは熱交析出物中に MCAM に取り込めないトルエン不溶解分が多いことが原因と推測されたことから、今後、MCAM はトルエン不溶解分がない試料に適用することを基本とし、トルエン不溶解分を含む試料に適用する場合は適切な補正因子を導入することとした。

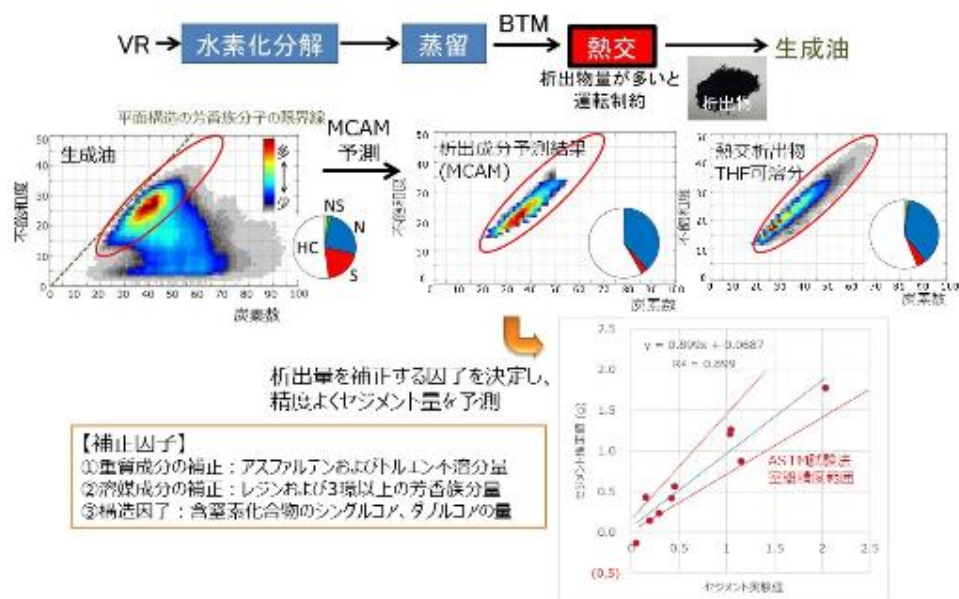


図6-15 MCAMによる減圧残油水素化分解装置でのセグメント析出量予測

b) 凝集にかかわる部分構造の解析

アスファルテン凝集には縮合芳香環同士の π - π 相互作用に加え、ヘテロ官能基等により発現されると考えられる高極性が大きく寄与していることを「重質油等高度対応処理技術開発事業」で明らかにしたが、具体的な官能基構造は明らかになっていなかった。そこで、本事業では種々のモデル物質とアスファルテンについて極性カラムを用いた分離実験を行い、含N官能基、フェノール、スルホキシド、カルボン酸等が高極性を発現している可能性が高いことを見出した。また、種々の条件において放射光を用いたX線散乱を極小角領域まで測定することでアスファルテン凝集体にはナノ凝集とは熱や溶媒による緩和挙動が異なる高次凝集相の存在が確認されたことから、MCAMの実用性向上にはこれらを計算プログラムに反映していくことが必要であることを見出した。

また、アスファルテン凝集体に含まれる代表的な分子群を推定する方法や、SMART-EM(単分子実時間電子顕微鏡)を用いてアスファルテン凝集体の実像を原子分解能で映像化する技術等、世界初と言える技術を開発するとともに、これらの手法により得られた情報を組み合わせることにより、アスファルテン凝集構造を分子シミュレーションを用いて描画する技術を開発した(世界初)。

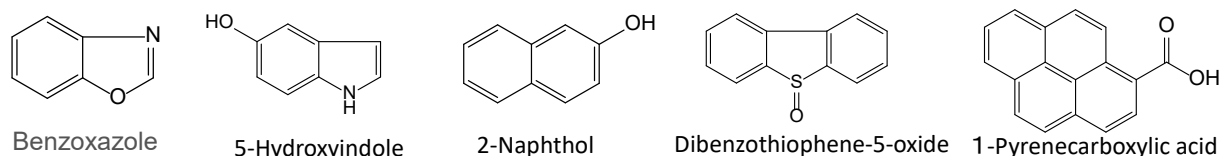


図6-16 アスファルテン凝集に影響を与える極性官能基を部分構造として持つ分子構造例

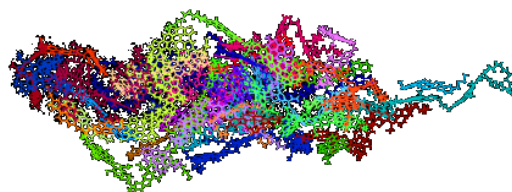


図6-17 分子シミュレーション技術によるアスファルテン凝集体のイメージ

(共通指標)

表 6－１０ 論文発表、特許出願等

年度	論文数	国内特許 出願	国外特許 出願	PCT 出願	国際標準への寄与	プロトタイプ之作 成
2016 年 度～ 2020 年	139 件	19 件	1 件	1 件	—	—
～2021 年度	1 件	5 件	3 件	3 件	—	—

<補足>

- ・ 査読付き論文数(共研先含む)は 9 件
- ・ 研究成果の受賞歴
2020 年度石油学会論文賞受賞
2019 年度日本エネルギー学会進歩賞
第 30 回日本エネルギー学会大会ポスター発表賞受賞
- ・ 特許は 2021 年度中に国内出願を 3 件程度追加予定。

7. 事業アウトカム

(1) 事業アウトカムの内容

原油の有効利用や調達原油の多角化の観点から、非在来型原油を精製可能とすることがこの事業の目的として掲げられている。非在来型原油等の物性、反応性等を評価することにより、それらの精製可能性を予測できるようになる。よって、アウトカム指標は、国内製油所で精製可能な非在来型原油の油種数とし、21 種類を精製可能とすることを設定した。

また非在来原油などを精製するためには、従来、組成が未解明のために処理が困難であった重質油について軽質原油を混合した際の挙動を評価することにより、原油混合時のスラッジ量や反応特性を予測し、国内製油所に最適な混合方法を推測することが極めて重要となってくる。この混合特性予測は原油の使用可否を判断するうえで非常に重要な指標である。そこで国内製油所に適する重質原油と軽質原油の組み合わせを 15 件確立することをアウトカムとして設定した。

RDS/RFCC 全体最適処理技術開発では、重油直接脱硫（RDS）装置にて、更なる重質処理運転促進を狙い、RDS 装置前段部（ガード）での偏流を大きく低減し、重油直接脱硫（RDS）装置と重油流動接触分解（RFCC）装置の組合せにおいて、常圧残油（AR）を原料にした際の RFCC によるガソリンや軽油留分等、高付加価値燃料油への転換効率を向上することをアウトカムとした。これにより、日本の製油所に多い重質油処理プロセスである RDS/RFCC の最大活用・最大効率運転を図り、石油のノーブルユースを達成し、国際競争力の強化に資する。

非在来型原油および残渣油の 2 次装置反応性解析では、非在来型原油の適用数を増加することで、製油所の経済性や生産性が向上し、国内のエネルギーセキュリティ向上に寄与する観点から、平成 32 年度までに、製油所の二次処理装置において適用可能な非在来型原油の油種を 10 種にすることを設定した。

重質残渣油の RFCC 原料化のための RDS4 触媒システム開発では重質留分の有効活用の従来 50%程度だった SDA 抽出率を 70%まで引き上げ、DAO を RDS で処理して RFCC 原料にすることにより、VR 留分の大幅な削減を見込む。またさらなるメリットを目指し、抽出率 80%の DAO 処理技術を設定した。

(2) 事業アウトカム目標

① ペトロリオミクス委託研究開発 (JPEC)

表 7-1 ペトロリオミクス委託研究開発 (JPEC)

アウトカム目標		目標の設定理由	目標達成状況
2020 年度	平成 32 年度までに、国内製油所で精製実績のなかった非在来型原油 21 種について、精製を可能にする。 指標：国内製油所で精製可能な非在来型原油の油種数	非在来型原油等の物性、反応性等を評価することにより、それらの精製可能性を予測できるようになる。よって、アウトカム指標は、国内製油所で精製可能な非在来型原油の油種数とする。	目標達成 ＜理由＞ 日本への輸入可能性がある非在来型原油 21 種類を選定・評価を行った。この一般性状および分子成分情報は、直脱装置 (RDS) での反応性や混合時のスラッジ析出挙動の予測等を可能とする。このような原油 DB は世界に例がない。
2020 年度	平成 32 年度までに、国内製油所に適する重質原油と軽質原油の組み合わせを 15 件確立する。 指標：国内製油所に適した重質原油と軽質原油の混合方法	重質原油と軽質原油を混合した際の挙動を評価することにより、原油混合時のスラッジ量や反応特性を予測し、国内製油所に最適な混合方法を推測する。混合特性予測は原油の使用可否を判断するうえで非常に重要な指標である。	目標達成 ＜理由＞ 重質原油と軽質原油を混合した際のスラッジ析出について、国内製油所に適する組み合わせを 21 件見出した。As 溶解性、及び混合原油の Wiehe パラメータを用いることによりスラッジ析出量を予測出来ることが分かった。本手法は簡便であり、製油所においても活用できる

②1303「RDS／RFCC全体最適処理技術開発」

表 7－2 1303「RDS／RFCC全体最適処理技術開発」

アウトカム目標		目標の設定理由	目標達成状況
2020 年度	①RDS ガード触媒層のグレーディング技術を開発し、重質油処理時に水平 ΔT 20℃以下維持して、1 年以上の安定運転を実現する。 ②ペトロリオミクス技術を活用して DSAR の詳細組成を把握し、それを軸に RDS と RFCC を連成することで全体最適を実現し、実機 RFCC にて有効成分液収率(ゲイン) 0.3vol%以上向上させる。	①固化・偏流・ホットスポットを回避するため、その前兆となる水平 ΔT の上昇を抑え込むことを目標とした。 ②RDS/RFCC 全体の収益性は、装置の安定運転を前提として RFCC プロダクトで決まるため、個別装置最適化の範囲を十分超えることを目標とした。	達成済み

③1305「非在来型原油および残渣油の 2 次装置反応性解析」

表 7－3 1305「非在来型原油および残渣油の 2 次装置反応性解析」

アウトカム目標		目標の設定理由	目標達成状況
2020 年度	平成 32 年度までに、製油所の二次処理装置において適用可能な非在来型原油の油種を10種にする。	非在来型原油の適用数を増加することで、製油所の経済性や生産性が向上し、国内のエネルギーセキュリティ向上に寄与する。	達成済み

④1306 「重質残渣油のRFCC原料化のためのRDS触媒システム開発」

表7－4 1306「重質残渣油のRFCC原料化のためのRDS触媒システム開発」

アウトカム目標		目標の設定理由	目標達成状況
2020 年度	SDA 抽出率 70%の DAO を用いた RFCC 原料化	従来 50%程度だった SDA 抽出率を 70%まで引き上げ、DAO を RDS で処理して RFCC 原料にすることにより、VR 留分の大幅な削減を見込む。	脱メタル触媒システムが重要であることを見出し、かつ脱窒素選択性の高い触媒を採用することで、DAO 処理に特化した触媒システムを構築し、2020 年度から実機運用を開始している。
2023 年度	SDA 抽出率 80%の DAO を用いた RFCC 原料化	本事業より、SDA 抽出率 70%の実用化のめどが立った。さらなるメリットを目指し、抽出率 80%の DAO 処理技術を設定した。これにより、抽出率 70%時に対して、1.5 倍の BR 処理が可能となる。	本事業で得た知見を基にした触媒システムの改良に加え、原油選択や運転条件の見直しなどのプロセス検討により、達成の見込みである。

8. 事業アウトカム達成に至るまでのロードマップ

「高効率石油精製研究開発事業」では、「重質油等高度対応処理技術開発事業」で開発した基盤技術を精製現場の課題の解決に活用につけていくため、「非在来型原油成分分析技術」、「RDS/RFCC 全体最適化技術」、「アスファルテン凝集制御技術」という3つの「適用技術」について技術開発を行うとともに、ペトロリオミクス技術開発で培った各要素技術を石油関連企業等が活用することを目指して取り組んできた（図8－1）。

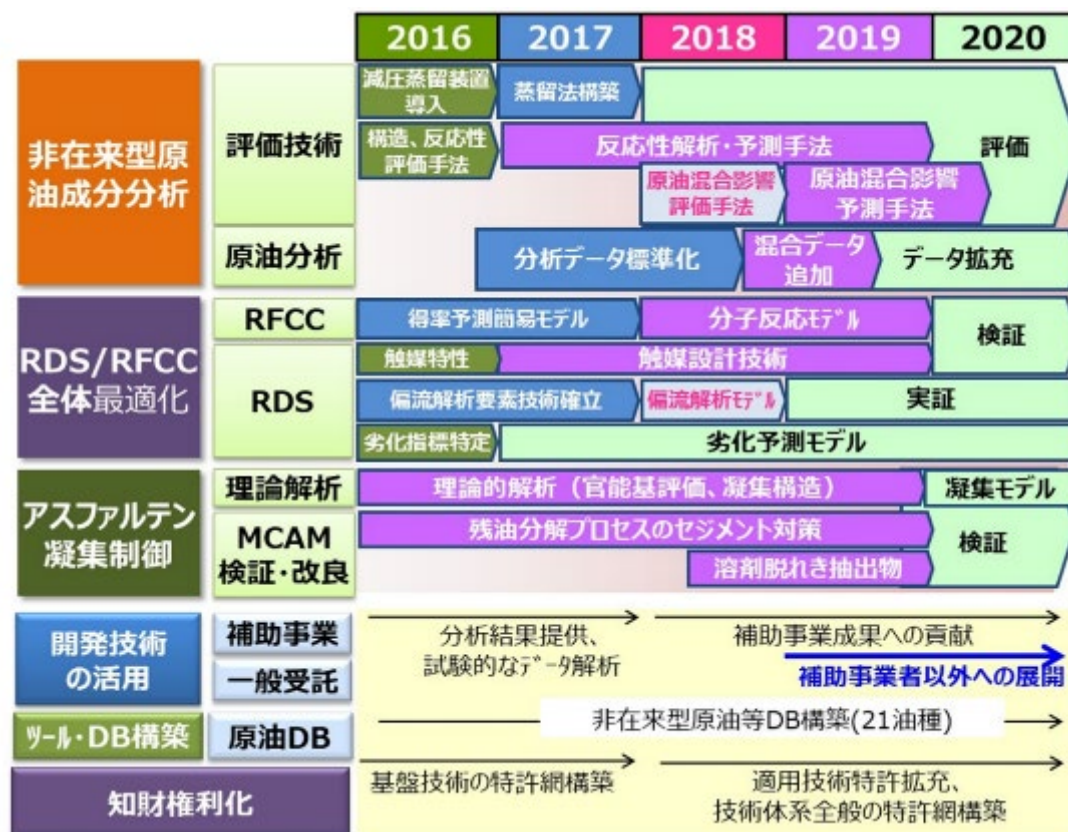


図8－1 本事業の5か年計画

この「適用技術」の良否がペトロリオミクス技術が今後実装置レベルで活かされるようになっていくかどうかの鍵であるが、「重質油等高度対応処理技術開発事業」で開発した基盤技術を発展させ、「非在来型原油成分分析」、「RDS/RFCC 全体最適化」、「アスファルテン凝集制御」に関する技術体系を構築し、重質油処理プロセスで起きている現象について石油会社のニーズを満たすレベルで解析データを提供出来るレベルまで到達することが出来た。

また、経済産業省が実施している「高効率な石油精製技術に係る研究開発支援事業（以下、補助事業と略す）」に参加する石油各社と連携し、石油会社が推進する技術開発にペトロリオミクス技術を適用した。研究成果は既に製油所に実装され、収益改善を実現している。（表8－1）

更に補助事業者以外の石油関連企業の技術課題解決への適用も開始（表8－2）しており、ペトロリオミクス技術により得られた結果については依頼者から高い評価を頂いている。

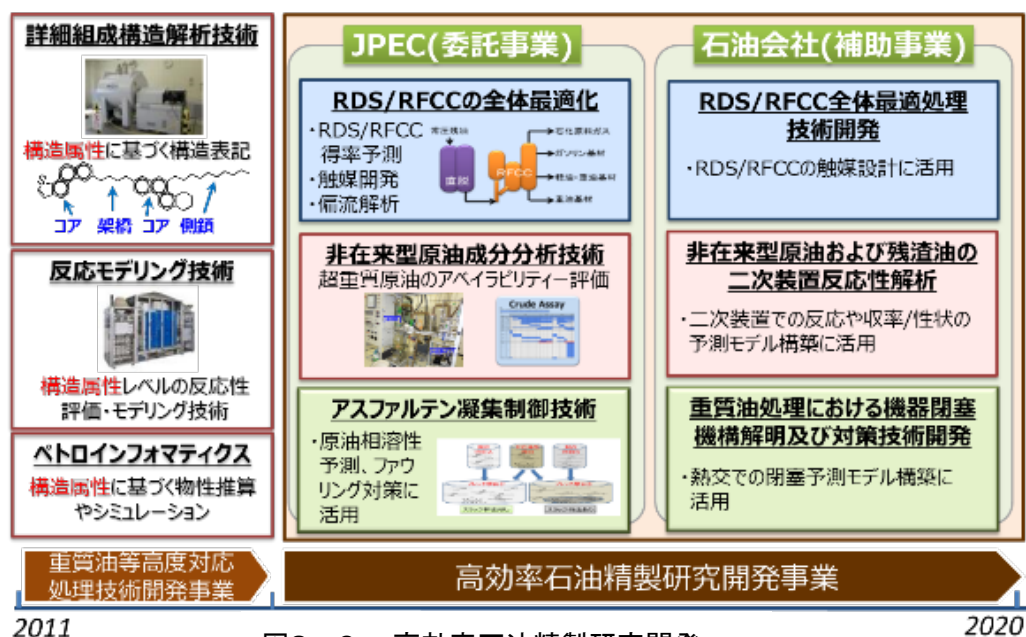


図8-2 高効率石油精製研究開発

表8-1 補助事業者との連携事例

テーマ名	ペトロリオミクス技術適用課題	成果事例
RDS/RFCC 全体最適 処理技術開発	①RFCC での分解向上のための RDS システム技術開発、 ②RFCC 原料 (DSAR) 性状に対応した RFCC 反応制御技術開発	①RFCC 分解反応性に優れた DSAR の製造とその製造により起きる RDS 触媒の活性低下を抑制する RDS 触媒システムの開発に貢献 ②従来不明であった原料油 DSAR 分子の大きさをペトロリオミクス技術により掌握し、DSAR 分子サイズ分布にマッチした細孔径分布を有する RFCC 触媒の選定に貢献。 開発触媒は製油所実装済み。
非在来型原油および 残渣油の二次装置反 応性解析	非在来型超重質原油および当該 原油から得られる残渣油等の 2 次処理装置 (SDA, RDS, FCC) で の反応性評価等による原油選択 範囲拡大検討	JPEC が開発した RDS 分子反応モデルを改良し、RDS の反応性評価に活用。 またペトロリオミクス技術を用いて SDA 生成油 (DAO) の収率・性状を予測するモデルを構築。成果は原油選択検討で活用され、収益改善に貢献。
重質油処理における 機器閉塞機構解明及 び対策技術開発	重質油処理装置におけるセジメ ント生成が原因となる機器閉塞 の対策技術の確立	ペトロリオミクス技術を活用し、処理原油種とプラント運転条件からセジメント生成・熱交閉塞を予測するモデルを構築。 処理比率を 10%以上増加可能な重質劣質原油種を見出し、収益改善に貢献。

表 8－2 補助事業者以外の技術課題への適用事例

依頼者	ペトロリオミクス技術適用課題	ペトロリオミクス技術活用実績
石油会社	RDS 生成油のセジメント生成要因検討 (プロセス条件による反応性の違い)	直脱生成油の詳細組成構造解析 及び MCAM 解析
触媒メーカー	RDS 生成油のセジメント生成要因検討 (触媒による反応性の違い)	直脱生成油の分析の詳細組成構造 解析
石油資源開発	原油中のアスファルテンの凝集制御	原油重質留分の詳細組成構造解析
石油備蓄	石油備蓄タンクに堆積するセジメント発 生低減(セジメントの構造特性把握)	セジメントの詳細組成構造解析

このようにペトロリオミクス技術の成果の社会実装は始まっているが、今後は、石油会社自らが課題解決に活用し、その中で抽出された課題を解決していく取組みが必要と考える。

JPEC としてはこのような石油会社の取組みを支援するとともに、石油各社やエンジニアリング会社より分析を受託し、課題解決の手助けをするサービスを展開する。本事業の成果を今後も課題解決に活用していく。

また、ペトロリオミクス技術により得られる分子成分情報とデジタル技術の組み合わせること等により、製油所のグリーン化に資する基盤技術を創出していく予定である。操業の効率化・省エネ化を進めるとともに、さらには廃プラ、バイオ、E-Fuels 等の低炭素燃料を石油精製と共処理することで製品の低炭素化を進める。これら技術開発にはペトロリオミクス技術の活用が必要となってくる。

このように、現在は製油所で活用することを中心に行っているが、さらに原油や重質油を扱う分野として石油開発や備蓄など多用途展開していく。

本事業で開発したペトロリオミクス技術を活用し、石油エネルギー産業界に貢献していく。

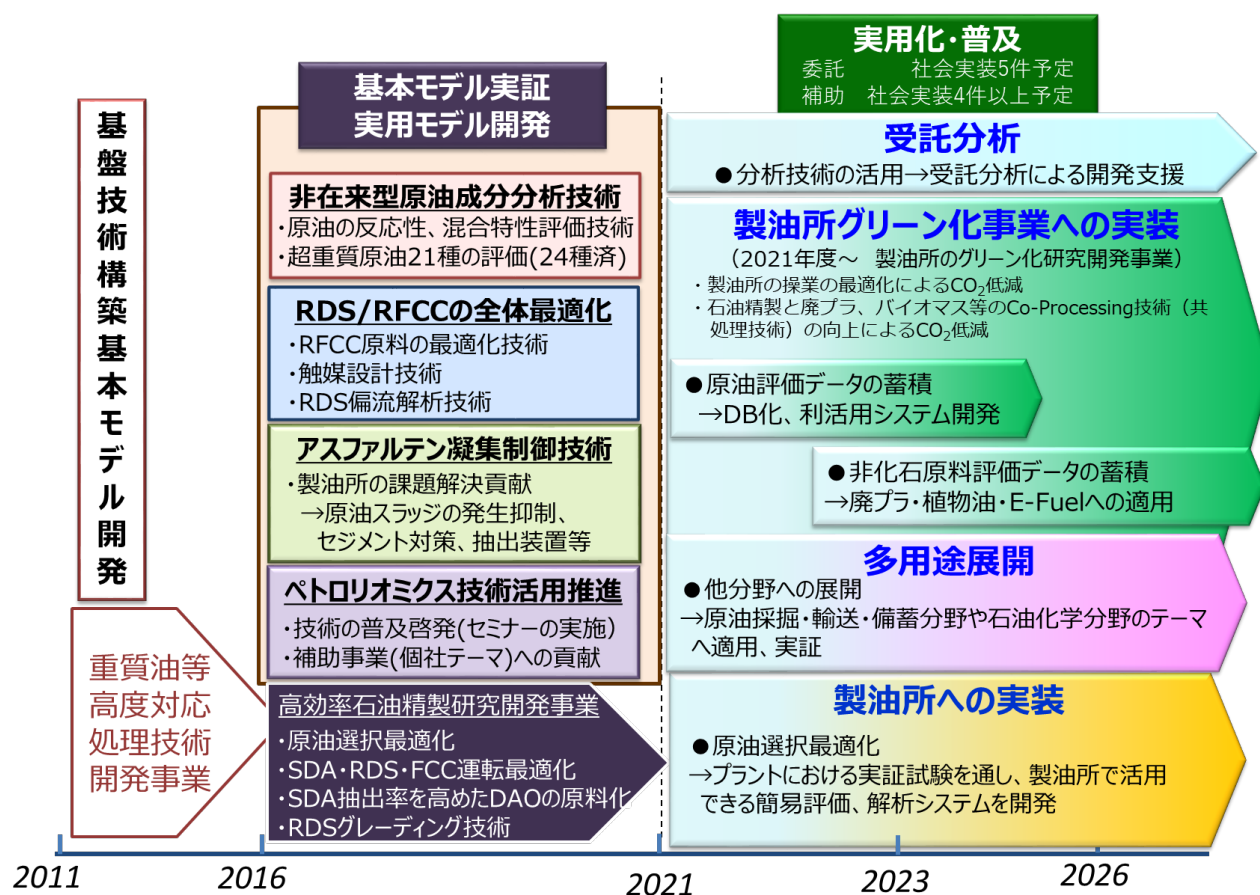


図8-3 事業終了後のペトロリオミクス技術の展開

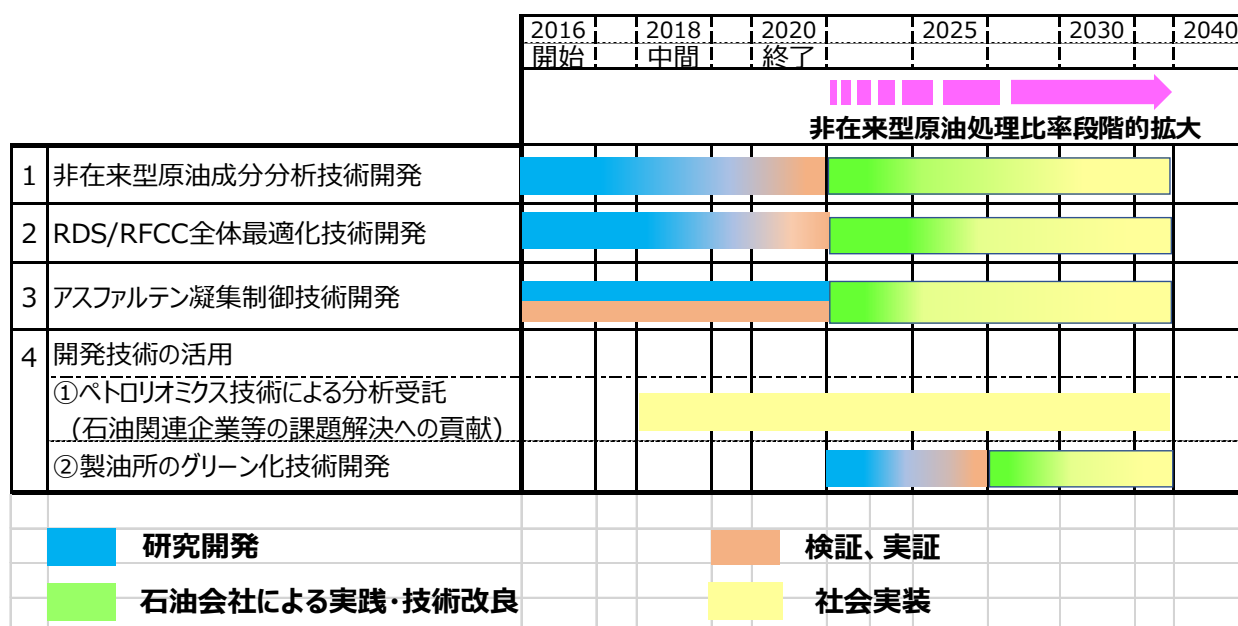


図8-4 ペトロリオミクス技術の社会実装に向けたスケジュール

9. 費用対効果

本事業は、委託費として 2016 年度から 2020 年度までの 5 年間で 2,322 百万円を投入した。本事業では石油製品を効率的に生産するための基盤的な技術開発を行うことで、調達原油の多角化を図るとともに、我が国の石油精製業の国際競争力を強化し、石油製品の生産基盤を国内に維持することにより、石油の安定的かつ安価な供給の確保に寄与する。本事業で開発したペトロリオミクス技術が原油の調達から国内製油所の重質油処理に展開された場合、処理原油の重質化が進み、調達原油の API 比重は 1 程度下がると試算され、380 億円/年程度の効果が期待される。

また補助事業においても、各社で本事業の成果を生かして実装が進められており、効果が出てきている。