

高品質再生基油製造における課題

Issues in manufacturing high-quality recycled base oil

ENEOS(株) (正) \*田川 一生 (非) 森脇 愛利子

Kazuo Tagawa\*, Eriko Moriwaki\*

\*ENEOS Corporation

1. はじめに

近年、我々は地球温暖化など様々な環境問題に直面している。その対策の一つとして大量生産・大量消費の社会システムからの見直しが進められサーキュラーエコノミー（循環型経済）も求められている。石油製品の一つである潤滑油は、日本においては使用後に回収されたその殆どはサーマルリサイクル用の再生重油として再利用されている。一方海外では、マテリアルリサイクルとして回収された使用済み潤滑油は様々なプロセスにより基油に再生され販売使用されている。使用済み潤滑油を再利用することは、原料が低 CFP 基材となることからカーボンニュートラル化対策の一つとして取り上げられている。さらに今後石油系燃料使用量の低減により原油からの連産品である潤滑油の原料も不足することが想定されるため、国内でのレジリエンスの強化としても再生基油が必要になると考える。その一方で、省エネ性や長寿命性の観点からマテリアルリサイクルされる基油の品質も重要であり、様々な種類の潤滑油が混合して回収された使用済み潤滑油を高品質なグループ II や III にアップグレードすることは、国内での再生基油の需要を高めるためにも重要な因子となる。

そこで本報告では高品質な再生基油の製造を目的とし、グループ I 基油をグループ II や III にアップグレードする検討を実施したのでその結果と課題について報告する。

2. 実験

2.1 試験装置、試験条件

Figure 1 に本試験に使用したパイロット設備の模式図を示す。装置は 2 塔の反応塔を備えており、それぞれが独立し、異なった触媒を充填することや個々に温度制御することが可能である。得られた粗油の評価項目は API の規格である硫黄分、飽和分および粘度指数とした。これらの品質を向上するためには、脱硫系触媒、核水添系およびナフテン環を分解する分解系の触媒が必要となる。また、反応の重要な項目として触媒との接触効率が挙げられ、流速で制御する試料油と各種触媒が接触する時間が長ければ反応はより進むため、品質は 2 塔の反応温度と触媒との接触効率が大きく影響する。反応条件は得られたホール留分を評価し各設定条件を調整していく。また要求項目に対して触媒の効果を確認するため 1 塔目と 2 塔目の間でサンプルを採取も実施した。

Table 1 に本評価に使用した触媒および試験条件を示す。本実験では脱硫を目的として Ni-Mo 系の触媒を、芳香族の核水添およびナフテンの開環を目的として細孔径の大きなアモルファス系の Ni-W と細孔径が制御された Y 型ゼオライト系の Ni-W 触媒を使用した。装置の構成上、脱硫触媒とアモルファス系触媒を 1 塔目に積層し、Y 型ゼオライトは異なる反応塔を使用した。試験条件は水素圧 12.1 MPa、LHSV 0.7~1.3h<sup>-1</sup> とし、その時の H<sub>2</sub> ガス流量は 18.4 NL/h、オイル水素比は 5,000 となる。実験は脱硫触媒の活性を重要視し反応温度 370°C から開始して段階的に反応温度を下げて行った。

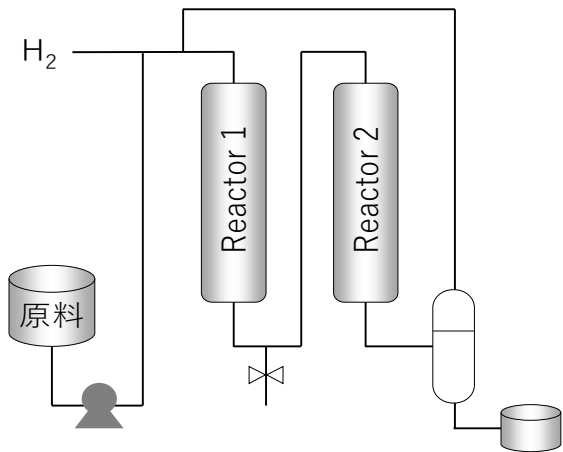


Fig. 1 Schematic of pilot plant

Table 1 Test conditions

Reactor 1 脱硫・脱窒素 芳香族核水添	HDS・HDN・HDC1 Ni-Mo (脱硫・脱窒素) (アモルファス系*)
Reactor 2 ナフテン環開環	HDC2 Ni-W (Y-ゼオライト系)
H <sub>2</sub> pressure	12.1 MPa
Temperature	Max 370°C
LHSV,	0.7~1.3 h <sup>-1</sup>
Oil flow rate	21~39 ml/h
Gas rate	18.4 NL/h
H <sub>2</sub> / Oil	5,000

## 2.2 試料油、評価方法

国内で回収される使用済み潤滑油は7割がエンジン油で残りの3割が工業用潤滑油とされている。しかし回収される場合にこれらの混合比率を制御することは困難であることから、原料油には工業用潤滑油が100%になったことを想定して、グループI基油を選定した。粘度グレードは再生重油のJIS規格に適合するISO VG32(150N)とVG46(250N)の2種類を選定した。試料油の性状をTable 2に示す様に、両試料油は粘度の相違はあるが、飽和分70%前後、粘度指数は100前後で硫黄分は約2,000ppmとなっている。

評価はパイロット装置より得られたホール留分の液収率およびAPI規格に項目の物性に加えて基油としての一般物性により行った。

## 3. 実験結果と考察

Table 3 に試料油 VG32 の結果を示す。試験条件 S-1 (370℃) や S-2 (350℃) では反応温度が高く、基油全体が分解してガス化した。反応温度を 330℃ (S-3) に下げることで液体を回収することができたが、基油成分の分解を抑えられず動粘度が著しく低下している。さらに分解を抑制するため、触媒との接触率を下げた 1.0 h<sup>-1</sup> 条件 (S-4) でようやく粘度指数が算出可能な物性となった。しかし原料に比べて粘度低下が大きく硫黄分も約 25ppm と目標値よりも若干高くなっている。この対策として脱硫を促進するため1塔目の温度 350℃とし、基油の分解を抑えるため2塔目をバイパスしたのが S-5 および S-6 であるが、粘度低下は抑制されるが、S-4 に比べて粘度指数が低下するため、API の Group II の規格は満足できるが、Group III 基油の規格を満足しない。

Table 4 に分解による粘度低下を考慮し VG46 を試料油とした実験結果を示す。VG32 の結果を考慮し開始温度を 350℃ (S-7) に設定したが、分解率が高く接触効率をほぼ倍(S-8)にしても大きな変化は認められない。そのため 330℃まで温度を下げ触媒との接触効率を 1.0 (S-10) および 1.3 (S-11) とすると分解抑制効果は認められるが飽和分が90%を下回ってしまう。より分解を抑制するため VG32 と同様に1塔目の反応温度を上げて2塔目をバイパスさせる条件で評価したが VG32 とは異なり VG46 の場合、本条件においても飽和分は目標値を満足しないことが確認された (S-12, S-13)。このことから粘度が高くなる、すなわち炭素数が大きくなると芳香族の核水添反応や開環の反応性が悪くなるということが想定される。この対策のため反応条件を厳しくする必要があるが、逆に分解が進み粘度が低下するものと推定される。

以上の結果より、低粘度 Group I 基油を原料とした場合には API の Group III 基油規格のうち飽和分と硫黄分を満足することは可能であるが、粘度指数の規格を満足することができないことが確認された。しかし、Group II であれば収率を確保してのアップグレーディングが可能であることが確認された。

Table 3 Test results of ISO VG32

			Base	S-1	S-2	S-3	S-4	S-5	S-6
LHSV	h <sup>-1</sup>		-	0.7	0.7	0.7	1.0	0.7	0.7
Temp.	C-1	℃	-	370	350	330	330	350	330
	C-2	℃	-	370	350	330	330	bypass	bypass
Saturate		%	70.9	-	-	-	91.9	92.8	85.0
Kinematic viscosity	40℃	mm <sup>2</sup> /s	27.3	-	-	2.99	10.5	15.7	21.5
	100℃	mm <sup>2</sup> /s	4.91	-	-	1.23	2.82	3.59	4.30
Viscosity Index		-	102	-	-	-	115	110	105
Sulfur content		ppm	2,200	-	-	4	25	8	88

Table4 Test results of ISO VG46

			Base	S-7	S-8	S-9	S-10	S-11	S-12	S-13
LHSV	h <sup>-1</sup>		-	0.7	1.3	0.7	1.0	1.3	0.7	1.3
Temp.	C-1	℃	-	350	350	330	330	330	350	350
	C-2	℃	-	350	350	330	330	330	bypass	bypass
Saturate		%	66.7	98.6	95.6	94.4	88.0	81.7	84.6	79.5
Kinematic viscosity	40℃	mm <sup>2</sup> /s	46.6	1.08	2.71	6.47	14.3	21.7	32.2	33.3
	100℃	mm <sup>2</sup> /s	6.76	0.58	1.18	2.10	3.45	4.31	5.55	5.62
Viscosity Index		-	98	87	374	131	117	112	109	107
Sulfur content		ppm	2,000	5	6	11	52	139	55	156

## 4. おわりに

日本国内における使用済み潤滑油のマテリアルリサイクル時の基油の高品質化について検討し次の結果を得た。

- 1) 使用済み潤滑油が Group I 基油であった場合、高品質である Group III 基油へのアップグレードは難しい。
- 2) 但し、粘度グレードにもよるが Group II へのアップグレードは可能と考えられる。
- 3) 回収油が高粘度になると改質の難易度が高くなるため、マテリアルリサイクルを効率的に行うためには回収油の粘度と再生油の品質設定が重要となる。