

令和元年6月13日現在

機関番号：16101

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K19015

研究課題名(和文) 圧力駆動型蒸留システムの装置化と安定運転技術の開発

研究課題名(英文) Development of pressure driven distillation system and the operating system.

研究代表者

外輪 健一郎 (SOTOWA, Ken-ichiro)

徳島大学・大学院社会産業理工学研究部(理工学域)・教授

研究者番号：00336009

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：圧力駆動型蒸留システムは新しい形式の分離装置である。これまでにシミュレーションによって分離性能および消費エネルギーの評価が行われてきた。本研究では実際に圧力駆動型蒸留システムを構築し、実験によって分離性能を評価した。各段の蒸気および液をサンプリングし、分析した結果、各段の組成がほぼ平衡組成となっていることが確認された。また当該システムの制御システムの設計について検討を行った。圧力駆動型蒸留システムは多数のコントローラを必要とするがそれらの干渉は小さく、安定に運転できることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

蒸留は多大なエネルギーを消費する分離技術であり省エネルギー化が課題となっている。本研究でテーマとする圧力駆動型蒸留システムは新規な蒸留技術であり理論的検討によってエネルギー効率が低いことが示されている。本技術が活用されれば、大幅な省エネルギー化を実現できる可能性がある。本研究では実用化を目指し、実際に圧力駆動型蒸留システムを構築して実験的に分離性能を検証したところ、十分な性能を示すことが明らかとなった。また、シミュレーションによってこのシステムの動特性についても検討し、安定な運転が可能であることも確認した。

研究成果の概要(英文)：Pressure driven distillation system is a novel separation technology, and the theoretical performance and the energy consumption rate have been clarified. In this study, a pressure driven distillation system was built and the separation performance was examined experimentally. The compositions of vapor and liquid samples taken from the system were close to those at the equilibrium conditions. A study was also conducted on the design of the control system for pressure driven distillation system. Although many controllers are required to operate the distillation system, they do not interfere each other and thus stable operation is possible.

研究分野：化学工学

キーワード：蒸留 単位操作 プロセス制御 化学工学

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

蒸留は化学産業で最も多く用いられている分離装置である。適用範囲が広い、高度分離が可能などの多くの利点を有する一方で、エネルギー効率が悪いことが問題となっている。この原因は蒸留装置では液の蒸発と蒸気の凝縮を行わねばならないためである。蒸発部(リボイラと呼ばれる)では蒸発潜熱相当分の大量のエネルギーを投入する必要がある。一方で、凝縮部(コンデンサ)では凝縮の際に大量の熱が放出される。コンデンサから出る熱を蒸発部で利用できれば大幅な省エネルギー化を実現できるが、凝縮部の温度が蒸発部よりも低いため、通常はこれを実現できない。

蒸留装置の省エネルギー化の研究としては、蒸留塔の基本的な構造を変えることなく、その組み合わせを工夫するアプローチが昔から行われている。例えば、ヒートポンプの利用(Flower et al., Trans. Inst. Chem. Eng., 42, 249, 1964)、中間コンデンサや中間リボイラの利用(Petryk et al., Int. Chem. Eng., 5, 309, 1965)、Secondary reflux and vaporization 法(SRV 法, Mah et al., AIChE J. 23, 651, 1977)などが提案されている。わが国では、HIDiC と呼ばれる蒸留装置が提案され(Nakaiwa et al., Trans. Inst. Chem. Eng., 81, 162, 2003)、特性解析や改良研究が進められている。HIDiC では、蒸留装置の濃縮部と回収部を異なる圧力で運転し、蒸留装置内部で熱回収を行う。

我々は近年注目されているマイクロリアクタの研究を進める中で、新しい蒸留技術の着想を得た。マイクロリアクタは微細管路中を利用した反応器で温度、濃度などの反応条件を制御しやすいので多くの反応の収率を向上できる技術である。マイクロリアクタの利点について考察を進めたところ、微細管路を使っていることに加えて、マイクロリアクタの反応システムが混合、熱交換、滞留といった個別のユニットの組み合わせで構成されていることに着目した。

これは1つの装置に複数の役割を担わせてきた攪拌槽型反応装置の設計とは全く異なっている。以上の考察により、反応に限らず分離においても目的の変化を行う進行させるために必要な基本操作をリストアップし、それらの機能を強化した上で再構成させれば従来にない新規な化学装置を提案できると考えた。このような考え方によって蒸留装置の考察を進めたところ、段や塔を最小単位とするのではなく、気液接触、気液平衡、気液分離を基本操作として捉え、それらを再構成する方針で検討を進めた結果、図1に示す圧力駆動型蒸留システムを発案するに至った。シミュレーションによる評価を行ったところ、消費エネルギーを従来比 30-50%程度削減できることが示されている。

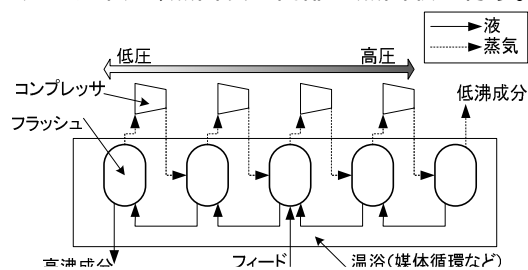


図1：圧力駆動型蒸留システム

2. 研究の目的

(1) 本研究の第一の目的は、この原理に基づく蒸留装置を構築し、実際にどの程度の分離濃縮が可能であるかを明らかにすることである。これまでの圧力駆動型蒸留システムに関する研究はシミュレータを使って定常状態での収支に着目した検討がほとんどで、実験データはわずかしか存在していない。新規な蒸留装置であるほか、各段に制御装置が必要であることから設計・製作に不明な点が多い。蒸留システムを実際に構築し、分離性能を明らかにできれば実用化に向けた方針と課題を明確化することができる。

(2) 圧力駆動型蒸留システムの安定運転を実現するためには適切な制御系を設計する必要がある。圧力駆動型蒸留システムは現行蒸留塔の1段に相当するフラッシュ蒸留装置が横並びになる構造であるため、蒸気・液の輸送を自動的に行うことができない。従って圧力駆動型蒸留システムには各段間の蒸気流量、液流量を操作するためのコントローラを導入し、運転の際には各装置内の圧力・液レベルを常時一定に保ち続ける必要がある。現在の実験装置では、圧力と液レベルはオンオフ制御されているため変動が大きいが、将来的にはPID制御などを導入してより変動を抑制することになる。コントローラは各段に増やす必要があるため、段数が増えるにつれてコントローラの数も増大する。このとき気液が交流接触する装置構成であることから、コントローラ間の干渉が生じる恐れがある。本研究では多段圧力駆動型蒸留システムの動特性を制御の観点から考察し、安定に動作する制御システム構築の指針を得ることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 分離性能を実験的に検証するため、複数段の圧力駆動型蒸留システムを構築し、メタノール・エタノール混合物を分離対象とする実験を行った。圧力駆動型蒸留システムの1段に相当するフラッシュ部分は、直径 89.1mm、高さ 300mm の円柱状容器とし、その周囲には熱媒を流通させるためのジャケットを備えている。まずこのフラッシュ装置の分離性能の評価を行ったのち、2段および3段の圧力駆動型蒸留システムを構築して多段分離における性能を調査した。このときに構築した3段の圧力駆動型蒸留システムを図2に示す。フィードは最低圧段に供給し、濃縮部の実験を行うこととした。液レベル制御および圧力制御では、それぞれ液の抽出量および蒸気の輸送量を操作変数として採用した。なおこれらの制御はいずれもシンプ

ルなオンオフ制御とした。ジャケットには 80 に設定した恒温槽の水をポンプで流通させた。各段の圧力および温度はデータロガーを用いて記録した。各段の液と蒸気をサンプリングし、ガスクロマトグラフで組成を決定した。

(2) 制御性の解析においては、まず 1 段の動的挙動を検討するため、液レベルと圧力が制御されたフラッシュ装置をダイナミックプロセスシミュレータ上に構築した。そしてステップ応答実験を行って 1 段の挙動を表現する 2 入力 4 出力の伝達関数モデルを同定した。これを相互接続することで、多段蒸留の場合の装置全体の挙動を表す伝達関数を導出し、その動特性と制御系設計法を考察した。さらに非線形性を考慮に入れたプロセス全体の動的シミュレーションを実施し、線形モデルでの考察結果との比較を行った。

4. 研究成果

(1) まず分離性能評価の結果について述べる。本研究で設計、製作したフラッシュ装置の性能について調査した。フィードのメタノール組成を 70mol%、循環させる温水の温度は 80、装置圧力は 1.34atm とし、フィード流量を 5~80mL/min の範囲で変化させて、得られる蒸気と液の組成を測定した。フィード流量が増大するにつれて装置内部の温度が低下し、流量が 80mL/min の際には、装置内平均温度が 77.7 にまで低下した。流量によって温度が変化するため、平衡組成が変化する。このため流量を変化させると得られる液と蒸気の組成が変化したがいずれの場合もほぼ平衡組成に沿って分離が行われていた。

液レベルと圧力をオンオフ制御しているため、制御動作にともなう状態の変動が比較的大きくなりやすい。従前の予備検討では、本研究で用いたものよりも小型の装置が用いられていた。しかし、本装置は内容積がより大きくなったため、温度および圧力の変化がより安定することも確認された。さらに、圧力を電磁弁の開閉ではなく背圧弁によって制御することにより圧力の変動をより小さくできた。

2 段の圧力駆動型蒸留システムを用いた分離性能評価実験を行った。フィード組成は 60mol% とし、各段の圧力制御の設定値は 1.26, 1.46atm とした。これらの値は我々の過去の研究で開発された McCabe-Thiele 法に基づく本装置の設計法を用いて求められた値である。フィード流量を 20mL/min として実験を行ったところ、塔頂、塔底ともに平衡組成に沿った組成をもつ混合物が得られていることが確認された。流量や圧力を変化させて実験を行った。フィード流量を増大させるにつれ、またフィード段の圧力を低下させるにつれて、フィード段の圧力が設定値よりも高くなった状態で安定する傾向が見られた。フィード流量増大、フィード段圧力低下とともに装置に供給される蒸気量が增大する。これに伴って本実験で使用している蒸気輸送装置の負荷がその能力を超えて高くなったためである。

3 段の圧力駆動型蒸留システムを用いた分離性能評価実験を行った。フィード組成は 60mol% とし、各段の圧力制御の設定値は 1.12, 1.20, 1.37atm とした。フィード流量は 25mL/min とした。この流量は装置内を流通する蒸気量が、蒸気輸送装置の能力を超えない条件から求めた値である。本実験において各段からサンプリングされた気液の組成を P-xy 線図にプロットしたものを図 3 に示す。この結果からいずれの段のサンプルも平衡に近い組成であることが明らかとなった。これらの結果により、圧力駆動型蒸留システムは十分な分離性能を示すことが実験的に示された。

本実験では、3 段までの実験を行ったが、実際の実験ではより多い段数での分離が求められる。従来の蒸留装置では段数を変更することは容易ではないが、本装置は各段が 1 つのモジュールとなっているので、容易に段数を増やすことができる。今後は段をさらに増やした実験を行い、分離性能を評価する実験が必要である。また、本研究にて消費エネルギーの評価を試みたが、周囲への放熱が大きいため十分な精度での測定を行うことができなかった。今後は断熱方法に配慮して装置を設計、構築し消費エネルギーを評価することも望まれる。

(2) 圧力駆動型蒸留システムでは、多数のフラッシュ缶で構成され、それぞれ異なる圧力

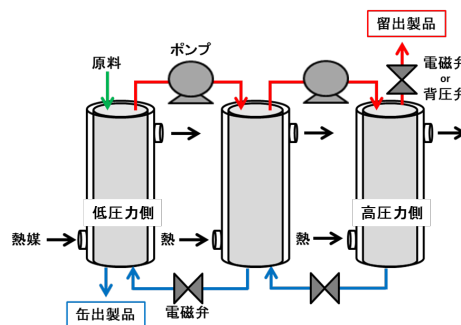


図 2：構築した 3 段の蒸留システム

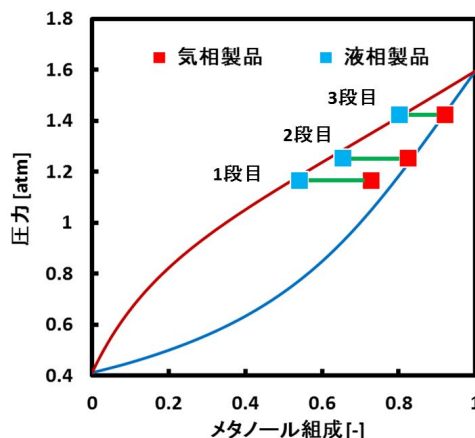


図 3：各段の気相・液相組成

で操作される。各フラッシュ缶は、その高圧側から液を、低圧側から蒸気を受け取り、発生する蒸気と液をそれぞれ高圧側、低圧側に送り出す。圧力、温度が制御された条件では、フラッシュ缶を出る各相の流量と組成は、それに流入する各成分の量によって定まる。そこで、本研究ではフラッシュ缶の状態を変化させる変数として各成分の流入流量を取ることとした。また、出力としては、気相および液相中の各成分の流量を取ることとした。フラッシュの入出力をこのように定義して動特性を捉え、1つの段に着目したとき、その入力、隣接する段の出力の和と表現できるようになる。すなわち、多段蒸留における流量変化が装置内部を伝達する様子をブロック線図を描いて解析することが可能となる。

例として水-アセトン系を取り上げた。成分数は2なので、フラッシュは2入力4出力系となる。液レベルおよび圧力は単純なPIコントローラによって制御されているという前提で、流量変化が各成分の流量に及ぼす影響を示す伝達関数を求めることとした。制御系が存在していることからダイナミクスが複雑になるため、理論的に伝達関数を導出することは困難であると判断し、ダイナミックプロセスシミュレータを使って得られるステップ応答の計算結果から伝達関数を同定することとした。対象とする装置が2入力4出力の多変数プロセスであることから、合計で8つの伝達関数が必要になる。検討の結果、本研究ではこれらを一次遅れあるいは二次遅れの伝達関数によって表現することができた。なお一部に逆応答を示す伝達関数が現れることがあった。

以上のように同定された伝達関数を用い、制御システム解析ソフト上に、2段から5段までの圧力駆動型蒸留システムを表すブロック線図を構築した。そのうえで原料流量や原料の組成がステップ変化させた場合の、各ストリーム中の各成分の流量および組成の時間変化を計算した。その結果段数が増えるにつれて塔頂、塔底の成分の流量変化速度が遅くなる傾向が見られた。これは、段数が増えることにより、段の間でのコントローラの干渉よりも、各段のローパスフィルタとしての特性がより強く現れることが示された。塔頂、塔底の組成変化に着目すると、ステップ入力によって組成が大きく変化し、その後元の値に戻るという挙動が確認された。最終的に元の値に戻るには、温度と圧力が一定の条件では気液組成が一意に定まるためである。段数が増えるにつれてステップ入力による一時的な組成の変化がより小さくなる傾向が見られた。しかし、元の値に戻るまでにより長い時間を要する傾向も確認された。これも各段がローパスフィルタとしての効果が強く、段数が増えると影響の伝搬が完了するまでにより長い時間を要することが原因である。

以上は線形モデルでの検討結果であるので、プロセスの非線形性が結論に及ぼす影響を検討するため、ダイナミックプロセスシミュレータ上に14段の圧力駆動型蒸留システムを構築して、ステップ応答実験を行った。対象はベンゼン-トルエン系を取り上げた。その結果、塔頂および塔底の流量や組成が発散したり振動したりする様子は確認されず、安定な運転が可能であることが示された。以上のシミュレーションでは、全ての段の制御パラメータを同一としていた。制御動作を強くすると不安定になる恐れがあるが、塔頂および塔底といった一部の段のみの制御をより強くすることで、組成に対する外乱の影響を抑制できる可能性がある。この指針に基づき、コントローラを再設計してステップ応答の計算を行った。その結果、ステップ変化による変動を抑制できることが示された。以上の検討に基づき、圧力駆動型蒸留システムに適した制御システム設計法を導出することに成功した。

5. 主な発表論文等

[学会発表](計 3 件)

Ken-Ichiro Sotowa, Takahiro Aoyama, Ryo Takagi, Kouhei Ito, Jesus Rafael Alcantara Avila and Toshihide Horikawa, Modular Concept Inspired by Microchemical Systems and Application to Distillation, 13th International Symposium on Process Systems Engineering (PSE2018), San Diego, 2018.

Takahiro Aoyama, Ken-Ichiro Sotowa, Jesus Rafael Alcantara Avila and Toshihide Horikawa, Performance evaluation of two types of small scale pressure driven distillation system, The 30th International Symposium on Chemical Engineering, Daejeon, 2017

Takahiro Aoyama, Ken-Ichiro Sotowa, Jesus Rafael Alcantara Avila and Toshihide Horikawa, Development and performance evaluation of a small scale pressure driven distillation system, The 11th International Conference on Separation Science and Technology (ICSST2017), Busan, 2017.

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。