

## 論文審査の結果の要旨

氏名：横山 克己

博士の専攻分野の名称：博士（工学）

論文題名：多成分系バッチ蒸留塔の実用的な最適運転方法に関する研究

審査委員：（主査） 教授 栗原 清文

（副査） 教授 平野 勝己 名誉教授 栃木 勝己

化学工業における分離操作は製品を精製する操作として必須であり、その分離には蒸留を用いられるケースが約8割といわれ、蒸留は化学プラントで極めてポピュラーな操作の一つである。そのため、化学工学分野でも古くから蒸留装置の設計や開発のために経験的な図解法の提案や理論的な研究が行われ、その体系が進められてきた。この蒸留操作は大きく連続蒸留とバッチ蒸留（回分蒸留）に分けることができるが、いずれも気液平衡を利用した分離操作であるにも関わらず、その操作方法は全く異なっている。連続蒸留は連続的に蒸留塔の途中段に原料をフィードし、塔頂と塔底から分離された成分を連続的に取り出す分離であり、大量生産に向いている。一方、バッチ蒸留は1つの蒸留塔を用い、底部にあるスチル（缶）に原料を仕込んで炊き上げを行い、塔頂から分離した成分を成分ごとに取り出す。この方法は連続蒸留に比較して装置が簡素化でき、成分数や処理量の変動に柔軟性があり、処理量が多くない場合に選択される。特に潤滑剤や乳化剤のような特殊な化合物を生産する際の精製、微量の混入物が不明な場合や高沸点成分が液状でなくなるような成分分離にも採用されており、近年の小品種の多量生産から少量多品種生産へのトレンドにより、バッチ蒸留の重要性は増しているといえる。しかしながら、バッチ蒸留の運転は非定常であり、運転中に蒸留塔内の組成や温度が刻々と変化するという複雑さから連続蒸留に比較して、次のような問題があり、実用的な運転方法がいまだに確立されているとは言えないのが現状である。①工業的にはモデルを用いての検討が遅れている。加えて、②溶剤回収などでは分離対象とする混合物の組成や成分の物性が不明な場合があり、そのような場合、経験的な運転に頼らざるを得ない。また、③工業的な運転では還流比一定で運転されており、省エネルギーの余地がまだ残されている。しかしながら省エネルギーを実現するための一つの方法として、④運転時間の短縮を目的とした最適運転を検討する場合、その方法は、扱う系、仕込み組成、装置条件や操作限界などに左右され、容易に決めることはできない。

そこで申請者は多成分系バッチ蒸留について、次のような目的を達成するために研究を遂行した。

まず蒸留対象とする混合物の組成やその成分の物性値が不明な場合、組成分析や物性値測定の専門家でもなくとも、蒸留を取り扱うエンジニアならば熟知している単蒸留（バッチ蒸留を最もシンプルにした蒸留法）を用いて蒸留実験を行い、得られた時間に対する留出液の温度と留出積算量のみから組成や物性値を求める方法を提案し、その有用性の確認を行う。

次に多成分系の連続蒸留では、分離の可能性や分離挙動の検討にレジジュアル曲線マップが使用されているが、バッチ蒸留では留出組成の時間変化を追跡することになるため、申請者は蒸留における液相組成をプロットするレジジュアル曲線マップに代えて、留出組成に当たる気相組成をプロットする留出曲線マップを用いることを新たに提案し、バッチ蒸留による留出軌跡が留出曲線マップを用いて定性的に推定できることを明らかにする。

最後に一般的な構造のバッチ蒸留塔について、実際のプラントで測定可能な塔頂とスチル温度、留出流量のデータをオンラインで得て、最適運転を行うことを検討している。すなわち申請者は、温度と流量の測定値から繰り返し加熱量を推算し、その都度最適な還流比を求めることにより運転時間を最短にする実用的な方法を提案し、この方法の有効性をプラントシミュレータによる仮想プラント上で検証している。

以下、論文の章立てに沿って、審査結果を報告するが、本論文は第1章の緒論から第7章の結論までの全7章より構成されている。

第1章「緒論」では、本研究の背景と課題、既往の研究と、本論文の目的と構成について述べている。

第2章「数式モデルとその解法」では、この論文で共通に使用する単蒸留モデル、バッチ蒸留モデル、気液平衡モデル、液液平衡モデル、エンタルピーモデルの各基礎式とその解法を述べている。

第3章「NRTL式による気液・液液平衡の測定と検討」では、蒸留計算で必須となる物性である相平衡として、気液・液液平衡データの測定と、活量係数式としてNRTL式を用いたデータリダクションについて述

べている。

第4章「単蒸留実験を用いた組成や物性パラメータの推定」では、廃液からの溶剤回収などでバッチ蒸留を用いる場合、混合物の組成やその成分の物性値が不明なケースがあり、それらの推定を行う方法を提案している。すなわち、組成分析や物性値測定のための特別な装置や技術、経験がない場合でも、簡単な装置で、容易に実験可能な単蒸留装置を用い、時間とともに変化する留出液の温度と留出積算量のみを測定し、動的な数式モデルを用いて組成や物性値の推定を検討している。

具体的には、理想溶液系であるベンゼン+トルエン+*p*-キシレン系と非理想溶液系であるメタノール+エタノール+水系の2系について、以下の3種の場合を検討し、本法により推定した組成や物性値の妥当性を確認するため、バッチ蒸留の運転の検討に推定値が使用できるかを確認している。まずケースⅠは混合物の組成が不明なケースであり、この場合には、理想・非理想溶液系ともに精度良く組成が推定可能であり、バッチ蒸留計算による検討に、推定した組成が問題なく使えることを示している。次にケースⅡは、組成は既知であるが一つの成分の物性が不明な場合であり、この場合でも推定する物性パラメータの数を減少させる必要があるものの、理想溶液系の推定結果はバッチ蒸留計算を比較的良く再現し、また、非理想溶液系については、数%程度の範囲の精度で工業的にバッチ蒸留運転を計算できると結論している。最後にケースⅢでは、混合物の組成が不明でかつ一つの成分の物性が不明な場合を検討しているが、推定する値が多数になるため、推算の精度を期待できなくなるが、理想溶液系については、工業的に目安となる程度の精度で組成及び物性パラメータの決定が行えることを確認している。

以上より、バッチ蒸留において混合物の組成や成分の物性値が不明な場合でも、申請者の方法はバッチ蒸留の運転時間や分離される組成の目安を立てるために有効であると評価できる。

第5章「留出曲線マップによるバッチ蒸留の定性的な検討」では、バッチ蒸留における分離の可能性や留出組成の変化を検討するために、多成分系の連続蒸留による分離で用いられるレジジュアル曲線マップに代えて、留出曲線マップを用いる方法を提案している。これはレジジュアル曲線マップが液相組成の軌跡を描くのに対し、バッチ蒸留では時間に対する留出組成変化を追いかけることに着眼したものである。また留出組成は塔頂から得られる気相組成にあたることから、分離対象とする混合物のレジジュアル曲線マップを作成する過程（単蒸留計算）で同時に求まる気相組成の軌跡をプロットすれば、それが留出曲線マップとなることから、その作成も容易である。

そこで申請者は、理想溶液系（ベンゼン+トルエン+*p*-キシレン）、構成2成分系の一つに共沸点が存在するが蒸留境界のない系（アセトン+メタノール+水）、構成2成分系の一つに共沸点が存在しかつ蒸留境界を持つ系（メタノール+エタノール+水）及び2つの構成2成分系に共沸点が存在しかつ蒸留境界があり、加えて二液相を形成する系（水+プロピレングリコールモノメチルエーテル+プロピレングリコールモノメチルアセテート）を対象に、バッチ蒸留の検討にはレジジュアル曲線マップより留出曲線マップが適していることを示している。

以上より、留出曲線マップを用いて、バッチ蒸留での分離の可能性や、留出組成の変化を知ることができることから、運転の定性的な情報を得るために留出曲線マップが有用であると評価できる。

第6章「オンラインでのバッチ蒸留最適運転」では、実際のプラントからデータをリアルタイムで得て、オンラインで最適な運転を行う方法を提案している。すなわち工業的には留出中、還流比は一定として運転されているが、これを操作することで運転時間の短縮を目指したものである。そのため、まずオフラインで加熱量を一定としたバッチ蒸留計算を行い、還流比の操作方法として、①還流比一定、②還流比を直線的に（一定の変化率で）増加、③塔頂温度で制御して還流比に上限を設けるという、3種の方法を検討し、結果、直線的に増加させる操作方法が簡単であり、十分時間短縮できるとの結果を得ている。

そこで次に申請者は、実プラントの代わりにプラントシミュレータを使った仮想プラントにおいて、3成分系を分離するバッチ蒸留塔を対象に、オンラインで塔頂とスチルの温度、留出流量のデータをリアルタイムに得て加熱量を推定し、その値から操作時間を最短にするように予測計算した還流比を、プラントに0.2時間おきに繰り返し設定して運転した。その結果、従来の還流比一定運転に比べて24%もの時間短縮が図れることを確認している。

これより、申請者の提案はバッチ蒸留において、運転時間の短縮を目的とした最適運転の実現に有効であると評価できる。

第7章「結論」では、本論文の研究成果を総括して、結論としている。

以上、本論文は多成分系バッチ蒸留に適用できる実用的な方法論や指針を提示するものであり、これら

の成果が実際のプラント操作に活用されることが期待できる。

このことは、本論文の提出者が自立して研究活動を行い、またはその他の高度な専門的業務に従事するに必要な能力及びその基礎となる豊かな学識を有していることを示すものである。

よって本論文は、博士（工学）の学位を授与されるに値するものと認められる。

以 上

平成26年2月13日