

# 論文内容要旨

氏名 堀 内 均 平 

## 論文題目 内部熱交換型蒸留塔の実用化に関する研究

先の 1997 年 12 月に京都で行われた気候変動枠組条約第 3 回締約国会議(COP3)で 2000 年以降における地球温暖化問題への取り組みについて合意がなされ、日本は 2008 年から 2012 年で温室効果ガスの平均排出量を 90 年比で 6%削減するという目標を設定した。こうした背景から、従来の想定を超えたエネルギーの高効率利用・転換等の革新的技術の開発を総合的に推進する必要がある。エネルギー多消費産業である化学産業は、日本の全製造業のエネルギー消費量の約 20%弱を占めている。そのうちの約 40%が、蒸留分離プロセスで占められている。したがって蒸留分離プロセスの使用エネルギーの大半を占める従来型の蒸留塔を用いた分離への技術革新の役割は重要となってきた。

本研究では蒸留プロセスの使用エネルギーを大幅に減少し、炭酸ガスの排出を削減できる内部熱交換型蒸留塔(Heat-Integrated Distillation Column; 以下, HIDiC)の省エネルギー性に着目し、その実用化の開発を目指すことを目的としている。

「第 1 章緒言」では本研究の背景として HIDiC の省エネルギー性の原理並びに既往の研究を概観し、本研究の目的と意義について明らかにした。

「第 2 章 内部熱交換型蒸留塔による 2 成分系分離」では HIDiC の動作理論の実証を目的としたベンチプラントの動作性能を検討した。ベンチプラントはベンゼン-トルエン系を対象として、その処理量が 300[kg/h]かつ留出液・缶出液の組成が 99.5[mol%]以上得られる概略設計を示し、HIDiC が通常の蒸留塔と同様の製品を製造できることを明らかにした。また通常の蒸留塔では不可能な外部還流比ゼロでの運転も実証した。スタートアップからシャットダウンまでの塔内の圧力や温度の経時変化の測定を行い、その運転が通常の蒸留塔の運転とほぼ同じで安定性することを示した。

「第 3 章 内部熱交換型蒸留塔の適用可能系とその省エネルギー性能」では HIDiC の実用化に向けて分離対象系の選定を、ピンチテクノロジー解析を用いたカラムターゲット法により検討を行う。加熱・冷却限界線図(CGCC)が内部熱交換の濃縮部の冷却、回収部の過熱に形態が類似していることを利用して、様々な分離対象系の HIDiC 化への適用性の検討を行った結果、石油化学産業においては、シクロペンタンを中心とした 12 成分の炭化水素が原料系として適用性に優れていることを明らかにした。これらの知見を基に、商業機と同規模のパイロットプラントのプロセス設計の検討するために、濃縮部と回収部を 2 つの塔に分割するシミュレーションモデルを開発し、パイロットプラントのプロセス全体の運転条件の検討を行った。その結果、設計条件としては、理論段数を濃縮部と回収部ともに 35 段とし、濃縮部と回収部の圧縮比、 $P_2/P_1$ 、を 1.8[-]とすることにより、省エネ率が 30%を超えることが分かった。

「第 4 章 パイロットプラントの設計と構造」では、HIDiC のスケールアップ方法について 2 章で報告したベンチプラントの問題点を抽出し、クラッシュ&ビルド法により HIDiC の実用化について検討する。その結果、2 章において確立した二重管式熱交換器型構造(内管が濃縮部、外管が回収部; チューブユニット)を有するインターナル構造は有効であり、スケールアップにはこのチューブユニットをナンバリングアップが最適であることを明らかにした。また、プロセスの

設計においては、コンプレッサー周りの圧損の軽減のために圧力損失の少ない熱交換器の選定とともに配管のサイズを大きくした。また制御性の向上のため濃縮部塔頂の窒素での圧力維持、ならびにコンプレッサーの圧力と温度による制御方法の採用を行った。コンプレッサーへの凝縮液の巻き込み防止のため、コンプレッサー手前にプレヒータ設置を行った。HIDiC の次に重要な機器である効率のいいタイプのコンプレッサーの選択の必要性を明らかにした

「第5章 パイロットスケール内部熱交換型蒸留塔によるシクロペンタンの精製」では、2, 3, 4章の結果を考慮し HIDiC パイロットプラントの運転結果について検討する。その結果、世界初の商業規模 HIDiC 運転を達成することが出来た。また、HIDiC パイロットプラントは 1000 時間の安定した連続運転を達成するとともに外部還流ゼロという本プロセス特有の性能も確認した。また、リボイラーの負荷なしでの運転をも達成した。さらに、その省エネルギー率は既設の通常蒸留塔と比較して 60%以上も高いことを明らかにした。HIDiC 装置の経済性について、エネルギー削減により建設費の償却が可能な状況であり、温暖化防止の炭酸ガス削減については、高い省エネルギー率から大幅な削減できていることを示した。リボイラーフリーの運転を踏まえて、更なる省エネルギー化について検討した結果、原料の予熱に塔頂の凝縮熱を用いることにより、HIDiC をより効率的に操作することが可能になった。

「第6章 総括」では、本研究の結果を総括した。

## 論文内容要旨

氏名 堀 内 均 

論文題目 Research for Commercial Scale of Heat Integrated Distillation Column

Research of Heat Integrated Distillation Column(HIDiC) has been started since 1980 in Japan in a method of reducing exergy loss. As a verification of HIDiC theory, a bench plant has built and operated with binary feeds of benzene and toluene in 2000. This column was a double tube, held vertically. Outer tube of double tube is named as Shell and inner tube named as Tube. Space of Stripping Section of the column is room between Shell and Tube, also space of Rectifying Section is room of Tube inside. The both spaces are packed with Structured Packing. This type of column is called as Shell & Tube Type of HIDiC. This column in bench plant maintained stable operation and accomplished an operation on zero outer-reflux, which operation is impossible with conventional distillation column. This showed the possibility of the high energy-saving. This Shell & Tube type is succeeded to Pilot Plant in second-phase of HIDiC research. Since 2002, research for pilot plant, which is commercial scale, has been started. A technique to select applicable feed specification of HIDiC is fixed by modifying Column Grand Composite Curve (CGCC) of Column Target Method, which is similar to HIDiC in heating and cooling of column stage. With this CGCC, a 12 component mixture consisting of mainly C5 hydrocarbons was selected as feed specification. Another technique to design process of pilot plant is fixed by making computer program to modify HIDiC, which is imaginarily separated to a couple of conventional columns (Stripping and Rectifying). With simulation of this program, design base of pilot plant is that number of theoretical stage is 35 each in rectifying section and stripping section, and compression ratio of compressor is 1.8. The structure of HIDiC is assembled from 7 pieces of double tubes with result of Shell & Tube HIDiC in bench plant. Pilot plant was built in 2005. The operation result of pilot plant is the same as the result of bench plant and furthermore the result is that zero of reboiler load is accomplished and energy saving of HIDiC is more than 60% compared with conventional distillation column. 11 years cost of energy saving only is approaching cost of construction fee. The feasibility of this investment is accelerated with increasing cost of crude oil. With high energy saving, HIDiC is expected a role of reducing emission of carbon dioxide. An Ideal process of HIDiC is shown with heat exchange between top product and feed.

A practical method to alter a conventional distillation column to HIDiC is established by this research of pilot plant.

# 学位論文の審査及び学力確認の結果要旨

平成 20 年 8 月 22 日

理工学研究科長 殿

## 論文博士論文審査委員会

主査 尾 形 健 明



副査 多賀谷 英 幸



副査 會 田 忠 弘



副査 都 田 昌 之



学位論文の審査及び学力確認の結果を下記のとおり報告します。

## 記

### 1. 論文申請者

氏 名 堀内 均平

### 2. 論文題目

内部熱交換型蒸留塔の実用化に関する研究

### 3. 学位論文公聴会

開催日 平成 20 年 8 月 8 日

場 所 山形大学工学部 3 号館教室 (3-2307 号室)

### 4. 審査年月日

論文審査 平成 20 年 7 月 29 日 ～ 平成 20 年 8 月 8 日

学力確認 平成 20 年 8 月 11 日 ～ 平成 20 年 8 月 21 日

### 5. 学位論文の審査及び学力確認の結果 (「合格」・「不合格」で記入すること。)

(1) 学位論文の審査 「合格」

(2) 学 力 確 認 「合格」

### 6. 学位論文の審査結果の要旨 (1,200 字程度)

別紙のとおり

### 7. 学力確認の結果の要旨

別紙のとおり

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |       |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| 氏 名                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           | 堀内 均平 |
| 学位論文の審査結果の要旨                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |       |
| <p>本論文は、蒸留プロセスの使用エネルギーを大幅に減少し、炭酸ガスの排出を削減できる内部熱交換型蒸留塔(HIDiC)の省エネルギー性に着目し、その実用化の開発を目指すことを目的としている。</p> <p>「第1章 緒言」では本論文の背景として HIDiC の省エネルギー性の原理並びに既往の研究を概観し、本論文の目的と意義を明らかにした。</p> <p>「第2章 内部熱交換型蒸留塔による2成分系分離」では HIDiC の動作理論の実証を目的としたベンチプラントの動作性能を検討し、通常の蒸留塔と同様の製品を製造できることを明らかにした。</p> <p>「第3章 内部熱交換型蒸留塔の適用可能系とその省エネルギー性能」では HIDiC の実用化に向けて分離対象系の選定を、ピンチテクノロジー解析を用いたカラムターゲット法により様々な分離対象系の HIDiC 化への適用性の検討を行ない、シクロペンタンを中心とした12成分の炭化水素が原料系として適用性に優れていることを明らかにした。</p> <p>「第4章 パイロットプラントの設計と構造」では、HIDiC のスケールアップ方法について2章で報告したベンチプラントの問題点を抽出し、クラッシュ&amp;ビルド法により HIDiC の実用化について検討した結果、2章において確立した二重管式熱交換器型構造が有効であり、スケールアップにはこの構造のナンバリングアップが最適であることを明らかにした。また、本プロセスが従来型の蒸留塔に比して約60%以上の高い省エネルギー性が得られることを示した。</p> <p>「第5章 パイロットスケール内部熱交換型蒸留塔によるシクロペンタンの精製」では、2, 3, 4章の結果を考慮し HIDiC パイロットプラントの運転結果について検討した結果、世界初の商業規模 HIDiC 運転を達成するとともに外部還流ゼロという本プロセス特有の応答も確認した。また、リボイラーの負荷なしでの運転をも達成した。この時の省エネルギー率は既設の蒸留塔と比較して60%以上も高いことが明らかになった。また、HIDiC 装置の経済性についてはエネルギー削減により建設費の償却が可能な状況であり、温室効果ガス削減についても大幅な削減できていることを示した。</p> <p>「第6章 総括」では、本研究の結果を総括した。本論文研究の成果は、主論文として学術論文雑誌に4報(英文1報, 和文3報)掲載された。また、国際会議5件の発表, 特許1件の出願を行った。以上のことから、本論文は学術的にも工学的にも価値があるものと認め、博士(工学)学位論文として合格と判定する。</p> |       |
| 学力確認の結果の要旨                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |       |
| <p>博士論文公聴会における質疑応答, および、個別面接諮問により審査を行ったが、研究の進め方, 関連する知識, 語学力, 理解力など、博士(工学)として必要とされる能力を十分に備えていると認められたので、合格と判定する。</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |       |