液相空気酸化加圧連続反応試験装置の 建設ならびにその性能について*

岡崎 達也**

緒 言

われわれは数年にわたって基礎研究を続けてきた液相空気酸化法について、気・液・固の3相にわたる高度攪拌ならびに逆混合防止の特徴を有する管型押し出し流れの気液混相流通反応器を主体とする自動制御式加圧連続反応試験装置を試作し、これによって本反応の機構をマイクロ速度論的に明らかにすることを目的とした反応工学的研究、反応器の構造と特性に関する装置工学的研究、反応制御に関する制御工学的研究を実施してきた。この研究において試作した上記装置は Pilot Plant よりも基礎試験装置に近い性格および規模のものであるが、その間に Pilot Plant 建設の基本問題と考えられる多くの問題点につきあたり、個々の実際の解決に成果をあげたので、その経験と知識をもとにして Design よりも実験技術的な面で、しかも運転よりも装置の建設および性能に重点をおいて問題点を Pick up し提起する。

1. 液相空気酸化加圧連続反応試験装置の建設 ならびにその性能

われわれが設計、建設、運転を行なった液相空気酸化加圧連続反応試験装置およびその運転方法は、図1に示すごとく、2頭式 Reciprocating metering pump (B & L 社製 Univerdos HR-20 型) により、液状炭化水素を 1~16l/hr の一定速度 (FIT-1→ポンプストローク数の手動調節) で一定温度 (TIC-4→電熱) の HTS 浴の液予熱器に 50~60kg/cm²・g に加圧送入して適温に予熱し、別に Diaphragm Compressor で 150kg/cm²・g に加圧した空気と、酸素あるいは窒素とを 80kg/cm²・g 一定 (PCV-1, -2) で混合して 5~40% の一定酸素%に自動調節したガス (磁気式酸素分析計 MOT-1→ORC-1→FCV-1, -2)^(a) を 0.2~2.0m³/hr の一定流速 (FIT-2→FIC-2→FCV-3)^(a)、70kg/cm²・g の一定圧 (PCV-3) において気液ジェットミキサーに送入して予熱した

図1 液相空気酸化加圧連続反応試験装置フローシート

* 昭和41年5月11日 受理

** Tatsuya Okazaki 京都大学工学部 石油化学教室

液とジェット混合し、熱媒 (Dimethylnaphthalin または Tetrachlorodiphenyl) の高速循環 (タービンポンプ 60l/min, 反応器ジャケット内熱媒線速度 30cm/sec, 反応器内壁伝熱抵抗支配) により浴温を一定に調節した (TIC-3) 反応器に送入し、液滞留時間数秒～数分において反応させ反応器より排出するガス液を外部冷却にて急冷後気液分離器で分離し、ガスは一定圧に自動調節しながら排出し^(a)、酸素%を連続分析 (MOT-2→ORC-1) した後、ガス抜き器からのガスと合わせて計量、purge し、液は気液分離器液面を一定に自動調節しながら抜き出し^(a)、50→5kg/cm²・g に減圧して自動サンプリングガスクロマトグラフにより未反応炭化水素および Key 反応生成物を間欠分析し、ガス抜き器で脱ガスして中間計量槽を経て反応液貯槽に送るものである。反応器は SUS-27 製、内径 4～10mm, 長さ 4～20m, 内容積 50 cc～1.5l であり、気液の緊密な混合を急速に実現する適当な Baffle を内部にもつ。この反応器の装置特性⁽¹⁶⁾としては、流動特性において gas hold up (H) は送入気液中ガス容積分率 $[G/(G+L)]$ の 1.4～2.9 乗に比例し^(b)、気・液混合による圧損失増分 (Δdp) は気液界面生成エネルギーに起因するものであって $G/(G+L)$ の 0.9 乗に比例し、気・液各側の流速によらないことが見出され、伝熱特性において総括伝熱係数 300～900 kcal/m²・hr・°C, 物質移動速度特性において亜硫酸ソーダ水溶液の空気酸化速度 (酸素吸収容量係数) は Δdp の 2 乗に比例すること、液の逆混合特性において plug flow 率 85% 以上であることが明らかにされている。

以下、本装置の系統にしたがって装置設備の建設ならびに性能についての問題について述べる。

1-1 原料供給系の建設ならびに性能

1-1-1 液供給系 液の定速加圧供給に用いられている Reciprocating metering pump はその Valve 機構 (2 段ボールバルブ) に起因して吐出流量の吐出圧依存性²⁰⁾、脈動 (異相 Multipiston によれば脈動を軽減しうが微量流量の要求に合致しない)、およびテフロン製 V リングによる piston rod の圧 seal 機構において吐出、吸入のサイクルごとに高圧、低圧の圧変化をくりかえしながら摺動することに原因してテフロンパッキンの薄片が剥離しそれによる弁の閉止不十分、したがって流量の減少などの実際の困難が多い。K. A. Muller ら⁹⁾ の

加圧計量槽の工夫は簡便ではあるが、脈動防止、直接瞬間流量測定などにおいて欠陥があり、流量自動制御の閉回路を別に必要とし Reciprocating pump よりも有利とはいえない。ルーツ式 pump は原理的には脈動はないが、slippage の問題があるから pump 前後の差圧を大きくできない欠点がある。われわれは Reciprocating metering pump の欠陥を改善するために、ポンプ吐出側にテフロン布フィルター (テフロン薄片 濾別)、Buffer tank, 多段オリフィス (抵抗) を直列に付属設備することにより吸入圧常圧、吐出圧 60～90kg/cm²・g 常温、1～16l/hr の範囲において 5% 以下の脈動で定速加圧液供給を行なうことができたが、テフロン薄片によるバルブ閉止不十分の現象はさけられない問題であった。Reciprocating pump の液吐出波形 $[v_i(t)]$, 半波整流形] が 1 次遅れ系に与えられた時の出力波形 $[v_o(t)]$ および ripple % と Buffer tank 容量 (v_G) との関係は $v_i(t)$ を

$$v_i(t) = \frac{1}{\pi} + \frac{1}{2} \cos \omega t + \frac{2}{3\pi} \cos 2\omega t - \frac{2}{15\pi} \cos 4\omega t$$

と近似することにより

$$v_o(t) \doteq A \left[\frac{1}{\pi} + \frac{1}{2} \frac{1}{\sqrt{1+\omega^2 T_G^2}} \sin \left\{ \omega t + \frac{\pi}{2} - \tan^{-1}(\omega T_G) \right\} + \frac{2}{3\pi} \frac{1}{\sqrt{1+4\omega^2 T_G^2}} \sin \left\{ 2\omega t + \frac{\pi}{2} - \tan^{-1}(2\omega T_G) \right\} + \frac{2}{15\pi} \frac{1}{\sqrt{1+16\omega^2 T_G^2}} \sin \left\{ 4\omega t + \frac{\pi}{2} - \tan^{-1}(4\omega T_G) \right\} \right]$$

$$v_G = p_G V T_G / 2(p_G - p_0)$$

により与えられる。 p_G は Buffer tank 圧, p_0 は抵抗下流圧, V は液の平均容積流量, T_G は Buffer tank の時定数で $2R_0 V v_G / p_G$ に等しい。 R_0 は抵抗の抵抗係数, ω はポンプ回転数により決まる cycle である。 $\omega T_G = 1, 2, 10, 50, 100, 200$ に対して peak to peak の ripple % はそれぞれ 75, 47, 10.5, 2.2, 1.1, 0.55% と算出される。Buffer tank 0.05l, 多段オリフィス抵抗 $R_0 = 20\text{kg/cm}^2$ 16.6l/hr, $p_0 = 60\text{kg/cm}^2$ ・g, ポンプ回転数 = 7,200 rph の運転条件における液流量と ripple % との関係は 16.6, 10, 5, 2.5, 1l/hr に対してそれぞれ 1.7, 2.2, 4.4, 12, 21% と算出されるが、実験結果は計算値よりも約 1/5 に小さい脈動しか認められなかった¹¹⁾。これは多段オリフィスの脈動緩和特性 (おそらく非線形) によるものと考えられる。Buffer tank 容量が大に過ぎると piston cycle に対応した短周期小振幅脈動は消失するが、反応器系の圧変動による長周期大振幅脈動を生じる。

(a) 制御系 Minor Loop の制御特性

Indicial Response	供給ガス流速	供給ガス酸素 %	気液分離器液面	反応器出口圧
むだ時間 sec	0	12	0	0
90% 応答 sec	12	18	18	52

(b) $H = [G/(G+L)]^a$, i -Octane-水または i -BuOH-水系, 充填塔液液並流において $a = 1.08 \sim 1.26$ であるが¹⁰⁾、空気-水系, 空気-シクロヘキサン系本装置における気液並流ではそれぞれ $a = 1.4 \sim 1.7, 2.9$ となる¹⁰⁾。

図2 ガスの手動調節定速供給系

図3 高速熱媒循環による反応器浴温制御方法

1・1・2 ガス供給系 加圧ガスの定組成定速供給のためには、定常状態運転目的では図2に示す手動調節も有効であった。すなわちそれぞれの成分ガスの流速を独立に圧力計1~3、ニードル弁a~cの組み合わせの系により調節し混合するものであり、弁bをオリフィスとして開度を固定し、弁a, cの操作により圧力2, 3を定値に手動調節するものである。高圧下では圧力計2, 3の代わりに差圧用複合ブルドン管が有効である。成分ガス流速相互の干渉および反応器系の圧変動の干渉をさけるためには弁cの圧損失を大にすることが有効である。図1のごとき自動調節系では2次圧精密調節弁（PCV-1, -2, -3）を付属設備し、PCV-1, -2の2次圧を等しく調節することによりガス組成制御の、またPCV-3の2次圧精密調節により混合ガス流量検出制御の動特性が良好となるが、後述のControl Valveについての検討選択が十分でないでガス組成流量のhuntingを生じ手動調節よりも悪くなる場合も生ずる。Diaphragm CompressorはSUS-27板（0.5t, 16cmφ 2枚, 377spm）の油圧振動によるものであり、圧縮比13, 150kg/cm²・gで炭化水素を含むガスの圧縮に適しているが、Diaphragmの疲労破裂が1,000時間以下で起こるところに問題がある。吐出圧振動はCompressor部の後に適当な屈曲配管、Reserverを設けることによりさけられる。

1・2 反応器の建設ならびにその性能

Pilot Plantにおいて反応器の設計建設は中心問題で

あり、本Plant設計に必要であり、基礎試験よりも信頼度の高いKinetic dataを獲得する目的からはじまって、新製品の市場性検討、開拓のための製造目的にいたる広範囲の目的の中でその合目的性、集中性、経済性、作業性の検討によって規模および方式が決められるものであり、一般的議論は困難であるので、ここでは比較的一般性のある実際の問題を二、三とりあげる。

1・2・1 反応器への熱の供給または除去 Pilot Plantの運転において（i）定常運転によって本Plant設計に必要なKinetic dataを獲得する目的（よく行なわれる実寸単管試験の主要目的はここにあり、伝熱および物質移動特性の差異による反応成績の基礎試験結果よりの偏移の定量的評価を含んでいる）、および最大処理能力の追求という目的に対しては反応器浴温の安定性および可及的に大きい伝熱特性が要求される。とくに自己平衡性の少ない発熱反応に対してはその要求が強く、熱媒非循環では運転条件下反応熱による熱媒の断熱温度上昇速度を許容範囲に止めるに十分な量の熱媒に反応器を浸漬し熱媒の激しい機械攪拌によって、また熱媒循環では反応器ジャケット入口出口の温度差を可及的に小とするに十分な熱媒量を高速循環することによって実現しうる。（ii）非定常操作によって反応器の安定性試験を行なう場合（Flexibility試験に含まれる）、また反応器温度制御のための浴温制御閉回路を組む場合、また短時間に多くの情報を得るために反応器の速やかな加熱、冷却が必要となる。K. A. Muller⁸⁾は閉閉式電気炉によるRadiation Heaterを提案しているが、伝熱特性および温度制御の動特性において不適当と考える。（i）、（ii）の要求をとともに充足し、反応器の動特性検討、したがって反応器最適制御に必要なdata検討を可能とするためには、熱媒Heater、循環pumpの容量が大となることおよび計装費のかさむことを許容すれば、図3の熱媒高速循環法が有効と思われる。熱媒の種類については総説^{4,9)}も多いが、100°C以下では水、100~300°Cでは各種有機熱媒（200~300°CではTetrachlorodiphenyl）、300~500°CではNitrite-Nitrate Mixture（いわゆるHTS）が有効に用いられるが、HTSの循環には特殊ポンプを必要とする。500°C以上では砂の流動床浴、塩化アルミなどが用いられるが装置の磨耗、腐蝕の点で問題があり、水銀、熔融金属などは価格、重量、安全性などから問題があり、適当なものが少ない。

1・2・2 反応器温度分布の測定 Pilot Plantの反応成績としての反応器排出成分組成を合目的に制御するために、とくに管型反応器では反応器内成分組成分布を知ることが必要であるが、どの位置でも、主流体成分組成を直接に瞬間的平均値として測定する方法は、電気的、光学的測定法の利用しうるまれな場合を除いては開

発されていない。やむを得ず、反応進行程度あるいは反応成績を知る間接的尺度として温度分布を測定し、その制御により反応成績を合目的に制御しようとする試みが主として理論的になされている^{1-3, 6, 19, 21)}。また、反応器温度分布を一点ないし多点法ではなく Pattern として測定する試みが、赤外線暗視装置の応用によりロータリキルン、連続式鋼塊加熱炉においてとりあげられている¹⁸⁾。加圧反応器における测温の実際の問題は、反応器が小さく、シース肉厚が厚ければその程度に応じて、シースでの测温が定常状態での反応器内の真の温度からずれ、非定常の温度変化に対しては検出遅れおよび低感度となることにある。われわれは 0.3l Autoclave (蓋フランジは大気さらし、本体は 150°C 油浴浸漬、電磁搅拌 1,000rpm) での流通法シクロヘキサン酸化実験において壁中 4φ 穴、内壁より 10mm を隔てての测温が熱電対を直接に反応液の中に入れた場合よりも定常状態で 5°C 低く、短時間の液温変化 10°C 以上であっても検出されないことを認めている。反応器内局部温度測定には Response および安定性の点を考慮して、市販の Aeropak (SUS-42 シース、外径 1.0mm、素線 0.16mm、MgO 未絶縁) の flexible couple を直接反応器に挿入する方法が最適と思われる。われわれは気相固定床 (21~35mmφ) および気液混相並流の管型反応器 (4~10mmφ) にシース外径 1.0mm の上記 couple (0.75 級) を 6~12 本挿入して多点法により反応器温度分布を測定した。その解析および制御への応用については後に述べる。

1・2・3 反応器壁の汚れまたは腐蝕 Pilot Plant は本 Plant 運転条件下の装置材料の腐蝕試験、汚れ試験を兼ねて行なう必要がある。とくに反応器の汚れについては、熱交換器における汚れのきびしい管理に比して看過されている傾向と思われるが、内壁の汚れのために伝熱特性の変化、したがって反応成績に重大影響をもたらす場合のあることに注意を要する。反応器の清浄作業の容易な構造であることはもちろん、汚れの定期検査を要する。

1・3 Settler における界面検出

気液または気液固、液固混相流通の反応器および Settler における高温加圧下の界面検出方法については、静圧法、静電容量法、Isotope 法などが用いられるが、ガス泡を含む炭化水素液と炭化水素蒸気を含むガスの間の界面、非金属性泥漿と炭化水素液との間の界面はいずれの方法によっても検出困難であり、われわれはわずかに静圧法を比較的信頼せざるを得なかったが、不十分であり、今後の開発の待たれる問題である。

1・4 成分組成分析系の性能

Pilot Plant 運転における原料供給系および反応器排

出系の成分組成分析、物質収支計算、反応器の特性評価の道筋において迅速な分析が要求され、近年 Process Chromatograph あるいは赤外分光分析の応用 (むだ時間 0.6sec, 90% 応答 2.4sec) が発達し、分析は迅速化されてきたけれども、Chromatography の elution time, あるいは分析機器への Sampling 遅れによるむだ時間のために上記道筋の迅速化において分析が依然として neck になっている現状である。Chemical Plant としては比較的詳細に研究されてきた FCC の Pilot Plant においても、計算機を組みこみ data 整理の迅速化を行なった結果なお重量収支と生成物組成の data がまとまるのに test 後 2hrs と報告されている⁹⁾が、これは一に Process Chromatograph の分析時間 (4 成分 15 分, 17 成分 3 群 1hr) が最大 neck になっているものと考えられる。われわれの実施した磁気式酸素分析にはむだ時間を含めて 30~70sec, 自動 Sampling Gaschromatograph による Key 成分の分析には 5~10 分を要した。したがって成分組成分析を検出部とする閉回路の反応制御系を組むことは、電気伝導度、光学的分析、熱伝導度分析、または温度などのごとく主流中において直接瞬間に測定しうる物理的方法を適用しうるまれな場合、あるいは分析所要時間に対して反応器滞留時間の非常に長い反応系を除いては不可能と思われる。

1・5 計装関係の建設ならびに性能

一般に計器自体の時定数は数秒以下に短く (Transmitter 0.7sec + Controller 0.1sec + Recorder 1sec), 現在工業化されている大部分の化学反応については火照反応の如き迅速反応を除いて計器自体の動特性が問題となることはほとんどないと言ってよく、前述のように分析器を検出部として閉回路を組むことについて考慮を払うならば問題は少ない。しかし流量制御端に用いられる Control Valve については多くの問題が残されている。Pilot Plant 規模の流量は Plant の種類、目的により異なるが大体の線は 1bbl/day あるいはそれ以下とされており⁹⁾、この規模での Valve の流量係数 (C_v 値) は液の場合 $10^{-3} \sim 10^{-2}$ が要求されることになる。この要求は Valve の port の大きさ 3mmφ 以下、場合によれば 1mm 以下、Clearance は $10^{-3} \sim 10^{-2}$ mm の工作精度を要求することになり、このことは Valve 製作の技術より見て弁特性としての流量係数、流量特性、rangeability の三つをとともに満足させることが不可能に近く、また製作し得たとしても故障の起こりやすいことを示す。われわれの用いた図 1 のフローシートにおける Valve の特性は表示の如く rangeability または流量特性をかなり犠牲にしていることが明らかである。

次に加圧系における Control Valve は Port の Press seal 機構 (テフロン V リング数段) によって response

リアクター: 6mmφ×4m, シクロヘキサン, ペンゼン 9:1 wt, Co Nap. 10 ppm, ガス 0.5 m³/hr 15°C, ジェットミキサー液入 231~236°C, リアクター浴 186~189°C, 圧 50 kg/cm²・g 入口

図4 Co触媒シクロヘキサン酸化, 液流速と温度分布, 反応経過

FCV 番号	1	2	3	4	5
C _v 値	0.007	0.0045	0.0127	0.00225	0.0027
流量特性	equal %	逆S	linear	linear	1, e 中間
rangeability	34	40	26	13	15

に遅れを生じる(いわゆる Valve の hysteresis) ことが多く, われわれは常温 80 kg/cm²・g において数秒~10 数秒の作動遅れを認めている。この遅れは閉回路制御系時定数中の最大比率を占め前述の分析器の遅れと同様に制御性低下 (Hunting) の原因となるものであり, “流体素子”¹²⁾ あるいは並列多段電磁弁の組み合わせなどの迅速制御端の開発が望まれる。また高温, 低温においては Valve sheet と port の材質の熱膨張係数の差, あるいは蒸気凝縮などにより弁特性のみならず, 材料摺り合わせに不都合な影響を生ずることに問題が残る。次に Pilot Plant の計装は流量, 圧, 温度, 液面, 成分組成などの多変数自動制御系となり, 必然的にそれら制御 Minor loop 間の相互干渉が Process 動特性として問題となる¹²⁾。それらの相互伝達関数の定量的解析により, 計測ならびに制御の要素, 方法の選択, 精度検討を行なうとともに, Plant の全機能の定量的検討, したがって最適運転条件, 最適設計に必要な data 獲得が要求されることになるが, しかし, 動特性解析の困難がこの問題の究明を妨げている。すなわち, 化学 process は反応次数, 温度係数いずれも本来非線形であり解析式は粗い近似によらざるを得ないこと, および前述の迅速分析法の開発

が遅れており, 動特性解析に必要な data を与えることができないことによると思われる。

1・6 配管および圧 seal の方式

Pilot Plant の運転は一般に加熱, 冷却, 加圧, 放圧をくりかえす機会が多く, そのくりかえしによって次第に配管, 装置のフランジ接続その他のパッキンによる圧 seal 部が seal 不完全となる。とくに有機系パッキンは体膨張係数が装置金属材料に比して大きく, 弾性は小さいから注意を要する。われわれは packing less の袋ナットピースの配管接手を使用することにより, 安全, 簡単, 安価に加熱冷却, 加圧放圧のくりかえしおよび配管変更を実施することができた。

1・7 安全装置

工業装置の場合と同様に, 火災, 爆発, 傷病, 中毒など可能な全ての事故に対して安全対策を検討し, 機器の配置, 安全設備に注意することはもちろんであるが, 作業者はもちろん, 触媒, 装置のためにも, とくに critical な状態に達した場合に訂正動作が自動的に働くように配慮することが必要である。比較的看過されやすい問題は静電圧の問題である。一般に炭化水素のごとき非伝導性液体が配管中を 1m/sec 以上の速度で流れる場合には静電気を発生しやすく, 流速の速いほど ($\bar{v}$ に対して 2 次), 管径が太いほど (D_T に対して 1.7 次) 発生静電圧が高い^{7, 22)} とされているが, 静電気発生の理論が明らかでなく, また実験 data の少ない現在, パッキンにより電気絶縁されている個所のないよう装置のアースを洩れなくとっておくこと, 配管内流速の検討を行ない適当な個所にアースされた金属網をおくことなどの配慮が必要である。近年簡便に使用されるプラスチックまたは合成ゴム配管の場合にはとくに注意を要する。

2. 管型流通反応器による液相空気酸化における反応器温度分布解析と温度分布による反応制御

反応器内温度分布とその熱解析による積算発熱量対反応器軸方向長さの曲線は, シクロヘキサン酸化¹³⁾ の場合について例示すると, 図4のごとく S 字型曲線となることが認められた。反応器内液混合特性としての plug flow 率は 85% 以上に高いから, 反応器軸方向長さとそのそれぞれの流通条件における反応時間と等価であると仮定し, 酸素 1 Mol 反応について平均 100 kcal の発熱と仮定すると, 図4の S 字曲線は酸素の積算反応量対反応時間の曲線に換算しうる。これにより本装置, 酸化方法によるシクロヘキサン酸化反応の誘導期および定常反応速度を解析的に求めそれらに対して気液混合のマクロ的条件変化が影響をおよぼすことを見出した(気液界面の物質移動速度はマクロ速度論的には律速的でないことが別に確かめられている)。すなわち, 従来均一系と見なされ

ている自動酸化反応過程の中に含まれているラジカル的各素反応過程の組み合わせがマクロ条件変化に伴うミクロ速度論的条件変化によって左右されうること立証するものと解釈される。このように温度分布の測定解析は定常状態および非定常状態の反応の様相を間接的ではあるが迅速に知ることのできる有効な手段である。したがって温度分布を検出部とする反応制御法がわれわれの手中に入りうるのである。われわれはアセトアルデヒドの自動酸化反応において滞留時間数秒～10数秒の定常状態温度分布と反応器排出ガス、液の組成分析との対応確認¹⁴⁾ および非定常状態の温度分布測定 data に基づき、反応器内温度分布を最高検出量およびその位置の2変数をもって変換表示することにより検出演算する方法を提案し、それぞれのもっとも有効な操作変数として最高温度に対しては反応器浴温、最高温度の位置に対しては原

料液流量を調節する新規な反応制御法を提出した¹⁵⁾。

結 言

以上、液相空気酸化加圧連続反応試験装置の建設ならびにその性能について問題点を pick up して述べた。とくに、反応器内反応の迅速な解析、したがって反応制御のための迅速有効な情報をうる方法として反応器温度分布測定が現状ではもっとも有効であることを強調した。終りに、御指導、御討論をいただいた京都大学新宮春男教授、高松武一郎教授に、また本試験装置の建設あるいは運転に協力された島津製作所奥田昌宏、千代田化工建設片山昇、高島忠夫、小田信太郎、東亜合成化学工業加藤正典、鈴木修、宇都興産金田堯穂、縄田西、京都大学西村富三、喜多輝郎、中西英二の各氏に厚く謝意を表わす。

引 用 文 献

- 1) R. Aris: *The Optimal Design of Chemical Reactors* (1961)
- 2) E. Bartholome and R. Krabetz: *Z. Elektrochem.*, **65**, 223 (1961)
- 3) W. Brötz: *ibid.*, **65**, 255 (1961)
- 4) A. V. Chechtkin: *High Temperature Heat Carriers* (1963)
- 5) W. M. Heering, J. E. Hipman and S. E. Shields: *Chem. Eng. Progr.*, **59**, 38 (1963)
- 6) F. Horn: *Z. Elektrochem.*, **65**, 209 (1961)
- 7) A. Klinkenberg: *Chem.-Ing.-Tech.*, **36**, 283 (1964)
- 8) K. A. Muller, L. W. Hamilton, W. F. Johnstone: *Chem. Eng. Progr.*, **59**, 33 (1963)
- 9) 中村悦郎, 中山哲男, 兩宮登三: 石油学会誌, **8**, 746 (1965)
- 10) R. G. Rigg and S. W. Churchill: *A. I. Ch. E. Journal*, **10**, 810 (1964)
- 11) 新宮春男, 岡崎達也, 奥田昌宏: 未発表
- 12) 新宮春男, 高松武一郎, 岡崎達也, 奥田昌宏, 加藤正典: 第4回計測自動制御学会要旨集 p.383 (昭40.7)
- 13) 新宮春男, 岡崎達也, 西村富三, 喜多輝郎, 加藤正典, 金田堯穂, 高島忠夫, 奥田昌宏: 石油学会第8回研究発表会要旨 (昭40.9)
- 14) 新宮春男, 岡崎達也, 西村富三, 加藤正典, 金田堯穂, 高島忠夫, 奥田昌宏: 日本化学会第18年会, 20214 (昭40.4)
- 15) 新宮春男, 高松武一郎, 岡崎達也, 奥田昌宏: 日本自動制御協会第9回學術講演会要旨集 p.109 (昭40.5)
- 16) 新宮春男, 岡崎達也, 高島忠夫: 未発表
- 17) 研野和人他: 自動制御, **3**, No.10 (1964); **4**, No.6 (1965), **5**, No.4 (1966); 計測と制御, **3**, 289 (1964)
- 尾崎省太郎, 濃縮の研究, **18**, 13 (1966)
- 18) 豊田弘道, 知久明, 白沢忠雄, 高見勝己, 伊藤政, 野津孔二, 友貞昌太郎, 内匠尉男: 計測と制御, **4**, 828 (1965)
- 19) E. Wicke: *Z. Elektrochem.*, **65**, 267 (1961)
- 20) G. Vetter: *Chem.-Ing.-Tech.*, **36**, 185 (1964)
- 21) C. Schutt: *Z. Elektrochem.*, **65**, 245 (1961)
- 22) G. Schön: *Chem.-Ing.-Tech.*, **34**, 432 (1962)

連続重縮合反応装置のパイロットプラントについて*

宇 野 精 二**・鈴 木 昭 三**

ま え が き

1960年代における合成繊維工業の世界的な発展に伴って、合成線状ポリエステルの生産単位も著しく増大したため、これまでの回分式重合法に替わって、さらに連続

重合法を開発して工業化することが多くなって来た。図1は最近発表された連続重合法のフローシートの一例であるが、このような連続重合法を採用すれば、熔融状態で得られたポリマーをただちに成型して原糸またはフィルムとすることが可能となるので、回分法で用いられているチップ化、貯蔵、輸送、乾燥、再熔融の各工程を省略することができるため、コスト、品質の両面で利益が

* 昭和41年7月6日受理

** Seiji Uno, Shozo Suzuki 帝人株式会社