■ II. 拡散ならびに反応操作の最適化

1. 拡 散 操 作

II-1-(i) 蒸 留*

山 田 幾 穂**

ま え が き

電子計算機が汎用されはじめた1950年代後半から現在に至るまで、その発達は一ことにめざましく、プロセス設計、解析、シミュレーションなど各所に活用されていることは周知のところであろう。1950年代の後半といえば、すでに解説⁵³⁾されたように Acrivos ら¹⁾、Amundson ら²⁾、Lyster ら³⁶⁾、さらに Rose ら⁴⁵⁾によって電子計算機を駆使した蒸留計算法がつぎつぎに提出された年代でもあった。これらの計算法は、今日なおこの方面の研究がつづけられている諸蒸留計算法の基盤をなすもので、蒸留計算法から一歩すすめて蒸留プロセスの最適化に焦点があてられたとしても、数学モデルを考察する場合に欠くことのできない重要な論文であろう。蒸留操作の最適化に関するレビューは前回西村ら³⁷⁾によっておこなわれたが、ここでは、それ以後の文献について、装置の最適設計、連続蒸留、回分蒸留、真空蒸留その他、というような分類にしたがってレビューをおこなってみたい。以下に示した分類は必ずしも適切でないかも知れないが、最適化を蒸留操作に限定した場合、蒸留に興味をもつ技術者がなじみ易いような分類を考えてみたまでのことであり、前回のレビューと1,2文献が重複していることとあわせてお許しいただきたい。

1. 蒸留塔の最適設計

蒸留塔の最適設計という概念は決して新しいものではない。蒸留塔の自由度^{38,54)}から、所定の分離仕様に対して全段数最小として濃縮部、回収部の段数および原料段の位置決定がおこなわれなければならない。一般に、蒸留塔の最適設計の目的関数は、

$$P \equiv I - U - S \quad (1)$$

と定義され、 U および S は還流比の関数であり、図1のようにして最適還流比を決定しなければならないことは古く Treybal⁵⁰⁾の示したところである。一般に、 S は蒸留塔の製作費 C_c に最も影響をおよぼし、段塔に対して C_c はつぎのように定義される。

$$C_c = \frac{n_{th}}{E} (k_0 + k_D D_c^2 + k_H S D_c) \quad (2)$$

ここで、 n_{th}/E は実段数、()内第2項は一段当りのトレイ製作費、第3項はトレイ一段当りの高さに関する製作費を意味している。Neretnieks³⁴⁾は多孔板蒸留塔の最適設計を論ずるなかで、上昇モル蒸気速度 V が塔径 D_c の2乗に比例するとし、さらに、リボイラーおよびコンデンサーのコストが V に比例するとし、設定された償却年数に対して、年間あたりの塔コスト C_v を次式のように与えた。

$$C_v = \frac{1.5 \mu n_{th}}{E} (k_0 + k_1 V + k_2 \sqrt{V}) + (k_3 + k_4) V \quad (3)$$

そして、

$$\frac{dC_v}{dV} = \frac{1.5 \mu n_{th}}{E} \left(k_1 + \frac{k_2}{\sqrt{V}} \right) + 1.5 C_{th} \mu \frac{dn_{th}}{dV}$$

図1 還流比とコストとの関係

* 昭和47年7月22日受理

** Ikuho Yamada (正会員) 名古屋工業大学工業化学科

図2 シーボトレイのウエア高さ, F -因子が及ぼす等コストライン

図3 6成分系の分離に対する1システム

$$+k_3+k_4=0 \quad (4)$$

として最適な V を決定し、さらにさきに示した $V_1 \propto D_e^2$ の関係を用いて最適塔径を求めた。A. I. Ch. E. のマニュアル²⁾にも示されたように、 E は段間隔、塔径、ウエアの高さなどの関数であり、Neretnieks は F -因子とこれらの関係がコストにおよぼす影響を検討し、図2に F -因子とウエア高さ W をパラメータとした一段当りの等コスト線を示した。

なお、蒸留塔の最適設計に関して、最適段間隔の計算

式を示した Johnstone²²⁾、グリッドトレイに実例をとった Földes ら¹⁶⁾ の文献、最適原料供給段を論じた Waterman⁵²⁾ の報告、最適段数の図解法を述べた Van Winkle ら⁵¹⁾ の文献もある。

2. 連続蒸留

連続蒸留操作を熱力学的あるいは熱経済的立場から最適化を試みる報告はソビエトにおいてユニークなものが多い。前回紹介のあった Petlyuk ら³⁹⁾ 以後もシステムに関して研究がつづけられ、たとえば図3のような6成分系の分離に対して、Maikov ら³⁹⁾ はシステムの熱力学的最適指標 TPO を

$$TPO \equiv \frac{x_{B,3}^I}{x_{B,2}^I} \cdot \frac{x_{B,5}^{II}}{x_{B,3}^{II}} \cdot \frac{x_{D,2}^{III}}{x_{B,5}^{III}} \cdot \frac{x_{B,5}^{IV}}{x_{D,2}^{IV}} \quad (5)$$

と定義し、最適操作の場合、 $TPO \rightarrow 1$ とした。

Gal'tsov ら¹⁶⁾ は熱力学的分離効率 η を、与えられた原料組成から、留出および缶出組成成分を分離するに要する最小仕事 Q と、純粋な留出および缶出物に分離させる必要な最小仕事 Q^* の比、つまり

$$\eta \equiv \frac{Q}{Q^*} \quad (6)$$

と定義し、エチルベンゼン-スチレン系に具体的に例をあげ、留出率と η 、原料供給段と η の関係を図示し、塔の作業評価をおこなっている。

Popov⁴⁰⁾ は、還流過剰比の概念を提出し、それを

$$\sigma \equiv \frac{R}{R_m} \quad (7)$$

と定義した。そして、最適還流過剰比 σ_{opt} の計算式を示して全蒸留経費最小を考察した。

Scoricov ら⁴⁰⁾ は、原料供給量、留出量、缶出量、側

流量および各部の組成など変数間の関係式をあたえ、運転コスト最小を決定する最適条件を示した。Haase ら¹⁹⁾は、塔頂生成成分の加圧、液化を伴う実在の蒸留塔について、統計的モデルを示し、えられた回帰方程式から運転コストの最小化をおこなった。運転コスト最小に関する報告は、Shinsky¹⁷⁾、Anisinov ら⁴⁾のものにもみられる。

Pollard ら³⁹⁾は2成分系蒸留塔に例をとり、非線形プロセスの最適化制御問題の数値解法について述べている。Maareveld ら²⁸⁾は操作コスト、製品の性状、処理量に関して、蒸留塔の最適化の手法にコンストレイントコントロールを適用した。De Lorenzo ら¹²⁾は、2成分系蒸留塔の最適パンプパング操作を検討している。

また最適制御に関し、超分留プロセスの最適化制御におけるデジタル計算機のシステム構成を論じた Duchatel ら¹⁴⁾の報告、蒸留塔の最適条件を自動的に保つ制御機構をあつかった Maareveld ら²⁷⁾の報告、さらに、蒸気再圧縮蒸留システムのモデリングとパラメータの検討をおこなった Mensies ら³¹⁾の報告、経済的に高オクタン化ガソリンをうる目的で、脱イソヘキサナイザー塔の留出速度、還流比など最適操作変数の決定をおこなった Keer³³⁾の報告などを挙げておく。

西村ら³⁵⁾は多成分系蒸留操作において、それぞれの成分を分離する場合、原料組成の条件によってきまる最適なシステムパターンを論じた。そして、塔本体のある場所で、冷却および加熱がおこなわれる場合、最適な冷却および加熱の分布を検討した³⁶⁾。

3. 回 分 蒸 留

プロセスの大型化が進むなかで、回分蒸留の研究は、1950年頃から一時忘れ去られた感もあった。しかし、回分蒸留の完全自動化が可能となった今日のオートメーション技術により、回分蒸留の特質がみなおされ、再びこの方面の研究が、最適化を中心にして活発におこなわれはじめたこともまた興味深い。

回分蒸留の特色は、非定常問題をとりあつかっているため、プロセス方程式がつぎに示したような連立微分方程式となっているところにある。

還流ドラム:

$$H_D \frac{dx_{D,t}}{dt} = V(y_{1,t} - x_{D,t}) \quad (8)$$

段:

$$H_j \frac{dx_{j,t}}{dt} = V(y_{j+1,t} - y_{j,t}) - L(x_{j,t} - x_{j-1,t}) \quad (9)$$

蒸留缶:

$$\frac{d(H_B x_{w,t})}{dt} = L x_{N,t} - V y_{w,t} \quad (10)$$

$$\frac{dH_B}{dt} = -D \quad (11)$$

上式には等モル流れの仮定が含まれ、Numbering は塔頂よりなされている。

式(8)~(11)の数値解法は古く Mickley ら³²⁾によって示されているが、Luyben²⁵⁾は $\Delta t = 0.002 \text{ hr}$ として Euler 法によって解き、回分蒸留時間あるいは次式で定義される Capacity C

$$C = \frac{\{H_{B0} - D(t_F - t_D) - H_D\}}{t_F} \quad (12)$$

と設計および操作条件、つまり段上のホールドアップ、還流ドラムのホールドアップ、蒸留缶の仕込量、段数、還流比などの関係から定還流回分蒸留の実際のアプローチを提出した。図4~6は還流比と段数をパラメーター

図4 Luyben の等 Capacity 線図 (その1)
($\alpha=1.5$, $H_j=1$, $H_D=10$, $H_B=100$)

図5 Luyben の等 Capacity 線図 (その2)
($\alpha=1.5$, $H_j=1$, $H_D=10$, $H_{BD}=200$)

図6 Luybenの等 Capacity 線図 (その3)
($\alpha=2$, $H_f=1$, $H_D=10$, $H_{B0}=200$)

として平均留出モル %95 に対する等 Capacity 線を示したものであり、図4, 5から仕込量の影響が観察され、図5, 6から相対揮発度の影響が観察される。

Coward⁹⁾は Pontryagin の最大原理を用い、回分蒸留による2成分系分離をおこなうために必要な最小時間と、それに対応する還流比の決定法について検討をおこない、分離が困難であるほど最適還流 Policy が有用であることを示した。さらに、蒸留缶の濃度と最適還流比の関係を明らかにした¹⁰⁾。Donati¹³⁾は、還流比を一定にしたり、Coward¹⁰⁾の還流方式にしたがったり、あるいは還流比に放物線的变化を与えたりしながら、各成分

の相対揮発度、蒸留速度、理論段数などの相互関係を検討し、最適還流条件を求める数値実験的計算式を提出した。Robinson⁴²⁾は還流比一定、留出組成一定のそれぞれの場合について、Pontryagin の最大原理を用いて回分蒸留の時間最適操作条件の検討をおこなった。さらに、10成分存在するテレピン油中に52.2wt%含まれる α -ピネンを、一定量、一定純度で工業的に回収する場合、操作時間最小を目的として実験をおこない、最適還流 Policy を論じた⁴³⁾。前後してGoldman, Robinson^{17, 18, 44)}は2成分系回分蒸留の最適経済操作を目的として計算機によるシミュレーションをおこない、さらに多成分系にも拡張している。

すでに、Converse⁸⁾はホールドアップを考慮した場合の回分蒸留の最適化を論じたが、Keith²⁴⁾はこの方法を充填塔に拡張した。なお、Cutting¹¹⁾はコスト最小を目的とした回分蒸留塔の一つの制御方式を提出した。最後に、詳細はなお不明ではあるが、Barb⁵⁾, Simacek⁴⁸⁾, Splight⁴⁹⁾らの Ph. D. Dissertation および Price⁴¹⁾の文献をあげておく。

4. そ の 他

最後に、アセトンによるブタン-ブチレン留分の抽出蒸留プロセスの操作変数、静特性、動特性、経済性を調べたMatbeeb³⁰⁾の報告、Billet^{6, 7)}の真空蒸留の最適化を論じた報告があることをつけ加えておきたい。また、多成分蒸留塔の非定常特性およびスタートアップに関するHoward^{20, 21)}のシミュレーションも最適化に資するであろう。

主な使用記号

C = 回分蒸留のキャパシティ (式 (12))
 C_c = 塔自体のコスト (式 (2))
 C_v = リボイラー、コンデンサーを含めた塔コスト (式 (3))
 D = 留出モル速度 (式 (11))
 D_c = 塔径 (式 (2))
 E = 塔効率 (式 (2))
 H = ホールドアップ (式 (8)~(12))
 I = 利益 (式 (1))
 k = 定数 (式 (2), (3), (4))
 L = 液モル速度
 N = 段数
 n_{th} = 理論段

P = 最適設計の目的関数
 R = 還流比
 R_m = 最小還流比
 S = 償却費 (式 (1))
 S' = 塔断面積
 t = 回分蒸留時間
 t_F = 回分蒸留完了時間
 t_P = 着回成分が留出した時間
 U = ユーティリティコスト (式 (1))
 V = 蒸気モル速度
 x = 液相モル分率
 y = 気相モル分率

引用文献

- 1) Acrivos, A. and N.R. Amundson: *Chem. Eng. Sci.*, **4**, 29, 68 (1956)
- 2) A. I. Ch. E.: "Bubble cap tray design manual", New York (1958)
- 3) Amundson, N.R. and A.T. Pontinen: *Ind. Eng. Chem.*, **50**, 730 (1955)

- 4) Anisimov, I. V. and V. B. Pokrovskii: *Intern. Chem. Eng.*, **8**, [2], 323 (1968)
- 5) Barb, D. K.: Ph. D. Dissertation, Texas A. M. University College Station, Texas (1967)
- 6) Billet, R. and L. Raichle: *Chem. Eng.*, **74**, [4], 145 (1967)
- 7) Billet, R. and L. Raichle: *ibid.*, **74**, [5], 149 (1967)
- 8) Converse, A. O. and C. I. Huber: *I. E. C. Funds*, **4**, [4], (1965)
- 9) Coward, I.: *Chem. Eng. Sci.*, **22**, [4], 503 (1967)
- 10) Coward, I.: *ibid.*, [12], 1881 (1967)
- 11) Cutting, G. W. and A. Poll: *Chem. Process Eng.*, **51**, [5], (1970)
- 12) De Lorenzo, F. et al.: *Proc. Congr. Inter. Fed. Automat. Control 4th Warsaw Chem. Allied. Mass. Exch. Process Distn.*, **50** (1969)
- 13) Donati, G.: *Ind. Chim. Ital.*, **5**, [1], 1 (1969)
- 14) Duchatel, R., B. Sempe and G. Bornaed: *Chim. Ind. Genie. Chem.*, **101**, [3], 329 (1969)
- 15) Földes, P. and E. Békássymalnár: *Acta. Chim. Acad. Sci. Hung.*, **55**, [4], 437 (1968)
- 16) Galtsov, A. V. and V. P. Maikov: *Teor. Osn. Khim. Tekhnol.*, **5**, No. 2, 303 (1971)
- 17) Goldman, M. R.: *Brit. Chem. Eng.*, **15**, [11], 1450 (1970)
- 18) Goldman, M. R. and E. R. Robinson: *ibid.*, **13**, [12], 1713 (1968)
- 19) Haase, B. and J. Günther: *Chem. Tech. (Berlin)*, **22**, [1], 21 (1970)
- 20) Howard, G. M.: *A. I. Ch. E. J.*, **10**, [6], 1030 (1970)
- 21) Howard, G. M.: *ibid.*, **10**, [6], 1030 (1970)
- 22) Johnstone, R. E.: *Chem. Eng.* [238], CE 119 (1970)
- 23) Keer, D.: *Hydrocarbon Process.*, **48**, [10 (sec)], 93 (1969)
- 24) Keith, F. M. and J. Brunet: *Can. J. Chem. Eng.*, **49**, 291 (1971)
- 25) Luyben, W. L.: *I. E. C. Process Design Develop.*, **10**, [1], 54 (1971)
- 26) Lyster, W. N. and C. D. Holland: *Petrol. Refiner.*, **38**, 221 (1969)
- 27) Maareveld, A. and J. E. Rijnsdorp: *Automat. Control 4th Warsaw Chem. Allied. Mass. Exch. Process Distn.*, **35** (1969)
- 28) Maareveld, A. and K. E. Rijnsdorp: *Automatical*, **8**, [1], 51 (1970)
- 29) Maikov, V. P., G. G. Vilkov and A. V. Galtsov: *Khim. Technol. Toplivo. Masel.*, **18**, No. 16, 19 (1971)
- 30) Matbeeb, A. A. et al.: *49 Khim. Technol.*, **44**, [2], 120 (1968)
- 31) Mensies, M. A. and A. I. Johnson: *Can. J. Chem. Eng.*, **49**, 407 (1971)
- 32) Mickley, H. S., T. K. Sherwood and C. E. Reed: "Applied Mathematics in Chemical Engineering", p. 380, McGraw-Hill (1957)
- 33) Mooson, K.: *A. I. Ch. E. J.*, **2**, 240 (1956)
- 34) Neretnieks, I.: *Brit. Chem. Eng.*, **15**, [2], 193 (1970)
- 35) 西村肇, 平泉泰: 化学工学, **33**, No. 5, 459 (1969)
- 36) 西村肇, 金子紀男: 化学工学, **33**, No. 12, 1271 (1969)
- 37) 西村肇, 内藤文男, 藤田伸夫: 化学工学, **32**, 134 (1968)
- 38) Petlyuk, P. B. et al.: *Khim. Prom.*, **41**, 206 (1965)
- 39) Pollard, G. P. and R. W. H. Sargent: *Automatica*, **8**, [1], 59 (1970)
- 40) Popov, V.: *Khim. Tekhnol. Toplivo. i Masel.*, No. 10, 48 (1971)
- 41) Price, P. C.: *Inst. Chem. Eng. Symp. Series*, **58**, [46], 48 (1963)
- 42) Robinson, E. R.: *Chem. Eng. Sci.*, **24**, [11], 1661 (1969)
- 43) Robinson, E. R.: *ibid.*, **25**, [6], 921 (1970)
- 44) Robinson, E. R. and M. R. Goldman: *Simulation*, **13**, [6], 289 (1969)
- 45) Rose, A.: *Ind. Eng. Chem.*, **53**, 737 (1958)
- 46) Scoricov, N. E. et al.: *50 Khim. Tekhnol. Masel.*, **13**, [23], 29 (1968)
- 47) Shinskey, F. G.: *Oil Gas J.*, **67**, [29], 79 (1969)
- 48) Simacek, P. E.: Ph. D. Dissertation, Montana State University, Bozeman Mont. (1968)
- 49) Splight, C. E.: Ph. D. Dissertation, Northeastern University, Boston, Mass. (1968)
- 50) Treybal, R. E.: "Mass transfer operation", p. 301, McGraw-Hill (1955)
- 51) Van Winkle, M. and W. G. Todd: *Chem. Eng.*, **78**, [21], 136 (1971)
- 52) Waterman, W., J. P. Frazier and G. M. Bowman: *Hydrocarbon Process Petrol. Refiner.*, **47**, [6], 155 (1968)
- 53) 山田幾徳, 齊藤日出男: 化学機械技術, **24**, 121 (1972)
- 54) 山田幾徳, 杉江日出雄, 安部完二: 化学工学, **31**, 395 (1967)

(15 ページより続く)

- 21) 堀口明生, 杉本隆成: 京大防災研報告, **13**, B 457 (1970)
- 22) 大久保明: 「海洋物理」(I) 東海大出版会 (1970)
- 23) 堀口孝男: 第 16 回海岸工学講演会論文集, 177 頁 (1969)
- 24) 西村肇, 平泉泰, 熊谷幹郎: 化学工学協会第 37 年会講演要旨集 (1972)
- 25) 和田明: 第 14 回海岸工学講演会論文集, 261 頁 (1967)
- 26) 和田明: 第 15 回海岸工学講演会論文集, 297 頁 (1968)
- 27) 西村肇, 平泉泰, 熊谷幹郎: 第 19 回海岸工学講演会論文集 (印刷中, 1972)
- 28) 新田忠雄: 用水と排水, **5**, 416 (1963)
- 29) 内海区水産研究所報告に多くある。
- 30) 関文成: 海洋科学 (N), 海洋の有機化学, 1969 年 12 月号
- 31) 菱田耕造: 「海洋物理」(I) 東海大出版会 (1970)
- 32) Dobbins, W. E.: *J. Sani. Eng. Div.*, Proc. ASCE, **SA 3**, June 3949 (1964)
- 33) 片岡広, 宮内照勝: 化学工学, **33**, (2) 181 (1969)
- 34) 「赤潮に関する総合シンポジウム」予稿集, 日本海洋学会, 日本水産学会, プラントン学会 (1972 年, 東京)
- 35) 小原和子, 半谷高久: 海洋科学 (N) 1969 年 12 月号
- 36) Institute of Petroleum, "Water Pollution by Oil" (1971)
- 37) M. Blumer: *Environment*, **13**, (2) 2 (1971)
- 38) M. Blumer: *Science*, **178**, 1120 (1972)
- 39) 有賀祐勝: 海洋科学 (X) **2**, (6) (1970)
- 40) Eckhoff, D. W., N. E. Armstrong and M. Lary: "Advances in Water Pollution Research", Vol. 2 (1970)
- 41) 日本水産資源保護協会「遠東東部海域汚濁調査報告」(1971)
- 42) 西村肇: 科学, 1972 年 9 月号
- 43) 科学技術庁研究調整局「臭気臭に関する特別研究報告」昭和 39 年 10 月
- 44) Institute of Petroleum, "Ecological Effects of Oil Pollution" (1971)
- 45) 大沢悦治, 内田光穂, 斎藤親之助: 現代経済学, XXII (2) 67 (1971)
- 46) 土井潤一郎: エコノミスト, 1970 年 9 月 1 日号 95 頁
- 47) Loucks, D. P., C. S. Revelle and W. R. Lynn: *Management Sci.*, **14**, (4) B 166 (1967)
- 48) 経企庁経済研究所「水質保全システムの分析」(1970)
- 49) W. N. Torpey: *Journal of WPCF*, **39**, (11), 1797 (1967)
- 50) 西村肇, 沖野外輝夫, 友永剛太郎, 山岸宏: バイオテック, **2**, (10), 811 (1971)
- 51) O'Connor, D. J. and J. A. Mueller: *Journal of Sani. Eng. Div. ASCE*, **SA 4**, Aug. 955 (1970)
- 51') Amer. Chem. Soc.: "Cleaning Our Environment — The Chemical Basis for Action" (1969)
- 52) K. W. Kapp: 藤原泰三訳「私的企業の社会的費用」(岩波書店, 昭和 34 年)
原著は "The Social Cost of Private Enterprise" (Harvard Univ. Press, 1955)
- 53) E. J. Mishan: 都留重人監訳「経済成長の代償」(岩波書店, 昭和 46 年)
原著は "Growth: The Price We Pay" (Staples Press, London (1969))
- 54) Council on Environmental Quality "Environmental Quality" (U. S. Government Printing Office, 1971)