段間熱交換蒸留塔の操作圧力に関する一考察[†]

中岩 勝・大輪 優・秋谷鷹二

川崎成武・佐藤眞士

化学技術研究所^{††} プロセス開発部

Veerapot Lueprasitsakul・高松武一郎

京都大学工学部 化学工学科^{†††}

本研究では段間熱交換蒸留塔の操作圧力に関する考察を行い、濃縮部と回収部の間の操作圧力差を最小とする条件および、その決定法を示した。この操作圧力差の最小値により、与えられた分離条件を段間熱交換蒸留塔で達成するために必要な圧縮機所要動力の最小値が計算できる。さらにここで提案した方法の有効性をベンゼン/トルエン二成分系の分離を例として示した。

緒 言

段間熱交換蒸留塔は濃縮部を回収部よりも高い圧力で操作することにより両部の間で熱交換を行う省エネルギー型蒸留塔の一種である。著者ら⁶⁾は先にこの塔の所要段数と必要伝熱面積に関して、McCabe-Thiele法を拡張した形の設計型計算法を提案した。この計算はあらかじめ与えられた濃縮部と回収部の各操作圧に対して設計条件を見出すものである。従ってその操作圧ですべての熱交換段において必要な伝熱温度差がとれるかどうかはこの方法では判定できない。また濃縮部と回収部の操作圧力差が熱交換に必要な温度差に対して合理的に決定されていず、例えば圧力差が大き過ぎる場合には伝熱には十分であっても分離のために投入されるエネルギー量が大きくなり、一層の省エネルギー化を図るという点では問題があった。

本研究ではこの操作圧の決定に関する指針を示し、具体例を用いて段間熱交換蒸留塔の省エネルギー性と削減エネルギー量の限界について報告する。

1. 熱交換に必要な最小操作圧力差

Fig. 1 に示すように濃縮部回収部がそれぞれ P_r , P_s の圧力で操作され、全交換熱量が Q_T である段間熱交換蒸留塔を考える。一般に $P_r > P_s$ であり、これを保障するために圧縮機が設置され外部から動力 W が加えられる。

これにより両部の間の熱交換が可能となる。本研究では段間の熱交換により濃縮部ではその熱量に相当分その段からの還流液量が増加し、回収部では蒸気流量が増加する典型的なケースを対象にする。また Fig. 2 には濃縮部回収部の平衡関係 x - y , x - t および各操作線を示す。今、塔上部から濃縮部第 m 段までの交換熱量の総計を Q_m とする。これら m 段にはコンデンサの下部に熱交換しない段が含まれていてもかまわない。ここでは、各段で熱の出入りがない時に等モル流れが仮定できて、また、段間熱交換蒸留塔の一次近似として濃縮部回収部を通じてモル蒸発潜熱は濃縮部圧における値と回収部圧における値の平均値で一定であるとした。第 m 段での操作線は Eq. (1) となる。

$$y_{m+1} = \frac{Q_m + Q_c - D\lambda}{Q_m + Q_c} x_m + \frac{D\lambda}{Q_m + Q_c} x_D \quad (1)$$

この時 Fig. 2 で示される操作線と平衡線の交点が分離の限界となる。したがってこの段の温度が Fig. 2 の T_m^* を越えることはない。

Fig. 2 からわかるようにこの Q_m と T_m^* とは通常 1 対 1 に対応する。この対応は平衡関係および原料仕様、製品仕様により決定される。原料仕様および製品仕様は固定されているとすれば、平衡関係は操作圧力で決まるのでこの対応を便宜上 Eq. (2) で表す。

$$T^* = f(Q, P_r) \quad (2)$$

同様に Fig. 1 で塔底部から回収部第 n 段までの交換熱量の総計を Q_n とする。これら n 段にはリボイラの上部に熱交換しない段が含まれていてもかまわない。この段の操作線は Eq. (3) となる。

[†] 1987年4月11日受理

^{††} 〒305 茨城県つくば市東1-1

^{†††} 〒606 京都市左京区吉田本町

Fig.1 Schematic diagram of a plate-to-plate heat-integrated distillation column

$$y_n = \frac{Q_n + Q_c - D\lambda}{Q_n + Q_c} x_{n-1} + \frac{D\lambda}{Q_n + Q_c} x_D \quad (3)$$

Fig. 2 に示されるこの操作線と平衡線の交点がこの段の温度の下限値を与える。濃縮部と同様にこの対応をEq. (4) で表す。

$$T^* = g(Q, P_s) \quad (4)$$

f, g は分離限界の平衡温度を表す関数である。仲ら⁴⁾ は T - Q 線図上に表される Eq. (2) の関係を冷却限界曲線、Eq. (4) の関係を加熱限界曲線と呼び蒸留プロセスのエネルギー解析に利用した。また Flower ら²⁾ はリボイラーに供給されるべき熱量は McCabe-Thiele 図上の回収部の操作線の傾きにより決まることを指摘し、蒸気再圧縮方式を用いる蒸留塔において最適な回収部の熱交換段の位置を決める近似的な方法を示した。

濃縮部の上から第 m 段と熱交換するのが回収部の下から第 n 段であるとき、全交換熱量が Q_T であることから次の Eq. (5) が成り立つ。

$$Q_n = Q_T - Q_m \quad (5)$$

したがってこの段間の温度差は Eq. (6) で与えられる ΔT_{max} を越えることはない。

Fig.2 Temperature difference between the rectifying section and the stripping section

$$\Delta T_{max} = T_n^* - T_m^* = f(Q_c + Q_m, P_r) - g(Q_b + Q_T - Q_m, P_s) \quad (6)$$

Eq. (2), (4) と同様に Eq. (6) も T と Q の対応を表す式となる。

前報⁶⁾ では操作圧と外部還流比 R_{MIN} 、塔中央部での還流比 R_{MAX} の 3 個の操作条件と原料仕様、製品仕様および濃縮部の熱交換しない段の段数を与えることにより熱交換段数、全必要段数、熱交換段での伝熱面積および回収部の熱交換しない段の段数が求められることを示した。有限段数の場合には、濃縮部回収部の各熱交換段の個々の温度は、操作圧力、 R_{MAX} 、 R_{MIN} を与えても段数計算を行わなければ決まらない。しかしながら操作線を決める交換熱量 Q の範囲は濃縮部ではコンデンサの熱量を含んで $Q_c \leq Q \leq Q_c + Q_T$ 、回収部ではリボイラの熱量を含んで $Q_b \leq Q \leq Q_b + Q_T$ であるからこの長さ Q_T の区

間での ΔT_{max} の値により濃縮部回収部の操作圧の必要条件を求めることができる。すなわち、この長さ Q_T の区間で Eq. (6) の ΔT_{max} が伝熱に必要な温度差以上であることが操作圧の必要条件である。このことは、回収部圧が決められている場合には濃縮部の操作圧が決まることになる。実際の操作における各段の温度はピンチ状態でない限り濃縮部では Eq. (2) で計算される温度よりも低く、回収部では Eq. (4) で計算される温度よりも高くなる。ただし例外的に $R_{MIN}=0$ の場合、コンデンサの直下段の温度は Eq. (2) の温度に一致し、 $R'_{MIN}=1$ の場合にはリボイラの直上段の温度は Eq. (4) の温度に一致する。各段の組成が xy 線図上で平衡線に近づくほど熱交換段の温度差も Eq. (6) の ΔT_{max} に近づいていく。その極限として R_{MAX} の最小還流状態では幅 Q_T の区間で各段組成は平衡線上にあり全ての熱交換段で温度差は ΔT_{max} に一致し、最大となる。したがって Q_T の区間における ΔT_{max} の最小値が熱交換に必要な温度差に等しくなる圧力が濃縮部操作圧の最小値を与える。この場合には無限大の段数が条件であり、有限段の塔ではこれ以上の濃縮部操作圧が必要となる。

2. 所要エネルギー量の下限値

Eq. (6) における、コンデンサ負荷 Q_C 、リボイラ負荷 Q_B 、および全交換熱量 Q_T は塔頂部のいわゆる外部還流比 R_{MIN} と塔底部での再加熱比 R'_{MIN} および塔中央部での還流比 R_{MAX} により Eq. (7), (8), (9) で表される。

$$Q_B = B\lambda(R'_{MIN}-1) \quad (7)$$

$$Q_C = D\lambda(R_{MIN}+1) \quad (8)$$

$$Q_T = D\lambda(R_{MAX}-R_{MIN}) \quad (9)$$

段間熱交換蒸留塔はユーティリティとして熱以外に、圧縮機を駆動するための動力を必要とする。この圧縮機動力 W は Eq. (10) で計算できる。

$$W = D w (R_{MAX}+1) \quad (10)$$

ここで w は圧縮される蒸気の単位量あたりの圧縮機所要動力である。この値は圧縮される蒸気の入口出口の圧力および組成の関数となる。例としてベンゼン/トルエン系で回収部の操作圧を 0.1013 MPa と固定したときの、濃縮部圧力をパラメータとした単位蒸気量あたりの圧縮機負荷とベンゼン組成の関係を Fig. 3 に示す。ここで計算には SRK 状態方程式⁸⁾を、またエンタルピー、エントロピーの計算に必要な理想気体状態の定圧比熱には Reid らの文献値⁷⁾を用い、理論効率 1 の断熱圧縮を仮定した。

回収部の操作圧を固定したときには、前述の濃縮部操作圧が段間の熱交換を可能とするうちで最も低いときに分離に必要な最小の圧縮機所要動力 W_{min} が得られる。

Fig.3 Relationship between composition and compression duty for benzene-toluene binary system

この W_{min} の計算手順を Fig. 4 に示す。 R_{MIN} を設定して、まず回収部操作圧 P_r の初期値を仮定する。濃縮部と回収部の間の操作圧力差が決まり、それに対応して R_{MAX} の最小値、すなわち最小還流状態の R_{MAX} は求められる⁵⁾。この R_{MAX} と、設定した R_{MIN} により決まる熱交換区間における ΔT_{max} の最小値を求める。この値が伝熱に必要な最小温度差に等しくなるように濃縮部操作圧力の探索を繰り返してこれを決定し、そのときの w を用いれば Eq. (10) によってこの分離に必要な最小の圧縮機所要動力 W_{min} を求めることができる。このとき熱交換段数無限大、かつ各段での交換熱量は無限小となる。なお、 R_{MAX} 、 R_{MIN} および P_s が決まれば P_s に対して P_r の初期値は熱交換温度差を考慮して妥当な範囲に設定することが可能であり、また P_r と ΔT_{max} は 1 対 1 に対応するので、Fig. 4 における P_r の探索は通常の一次元探索法で可能である。この操作圧力差の最小状態は同時に塔内流れの最小還流状態であるが、上述のように最小還流状態であっても操作圧力差が最小であるとは限らない。

Eq. (10) からわかるように圧縮機所要動力 W は R_{MAX} より決まり、 R_{MIN} には関係しないが ΔT_{max} の最小値を計算するのに必要な Q_T が Eq. (9) に示されるように R_{MIN} の値に依存しているので、 W_{min} を決めるためには R_{MIN} も必要となる。

他方、 W を加えることによる熱負荷の削減量は加熱量、冷却量ともに Q_T である。そこで圧縮仕事 W によってどれだけの熱負荷の削減が可能であることを示す次式の COP が一つの指標となる。

Fig.4 Calculation procedure for W_{min}

$$COP = \frac{Q_T}{W} = \frac{\lambda}{w} \frac{R_{MAX} - R_{MIN}}{R_{MAX} + 1} \quad (11)$$

ここで λ/w は操作圧力と組成により決まる項であり一種の物性とみなすことができる。

3. 具体例による検討

ベンゼン / トルエン系について本研究の手法による解析および設計例を示す。考察の対象とした原料仕様、製品仕様を Table 1 に示す。圧力損失は考えない。この条件で、操作圧力を 0.1013 MPa としたときの通常塔の最小還流比は 1.40、還流比をこの 1.1 倍としたときの所要段数は 28 段で Q_B 、 Q_C は各 4000 kW となる。他方この条件で R_{MIN} を 0.0 と設定したときの段間熱交換蒸留塔の圧縮機所要動力の最小値を与える最小還流状態での R_{MAX} および濃縮部操作圧力はそれぞれ 1.48, 0.1570 MPa である。そしてこのときの圧縮機所要動力は 189 kW で前述のようにこの値が段間熱交換の方式による所要動力の最

Table 1 Specifications of the calculation

Feed conditions	50 mol% Benzene 50 mol% Toluene flow rate 0.1 k-mol/s $q = 1.0$
Distillate	98 mol% Benzene
Bottom	2 mol% Benzene
Condenser	Total condenser
Operating pressure of stripping section	0.1013 MPa (T_i) min = 5 K

小値となる。この値以下の圧縮機動力では目的の分離を達成することはできない。この最小値は原料仕様、製品仕様、濃縮部の圧力および R_{MIN} の設定値から決まり、塔が熱交換しない段をもつかどうかには依存しない。またこのとき Eq. (11) で定義される COP は 12.33 となる。 R_{MIN} を設定可能な最小値よりも大きくし、また濃縮部回収部に熱交換しない段を設ければ、熱交換に必要な Q_T の区間幅を小さくできるのでより濃縮部操作圧を下げられる可能性がある。しかしながら COP は Eq. (11) からわかるように R_{MIN} にも依存しているので R_{MIN} がとり得る最小値のときに通常は（この例では 0.0）COP は最大となる。

濃縮部操作圧をこの最小値以上の値に設定すれば有限段の塔の設計が可能となる。以下にその設計例について検討する。

まず濃縮部圧を 0.2026 MPa、 R_{MIN} を 0.0 と設定する。この場合の所要段数が無限大となる R_{MAX} の最小値は 1.60 であり、 ΔT_{max} は幅 Q_T の区間にわたってほとんど均一で約 14 K となる。そこで R_{MAX} を 1.8 に設定すると前報⁶⁾の方法によりコンデンサ、リボイラを含めた全所要段数は 42 段（熱交換段 20 × 20 段）熱交換段での必要な UA 値は 14.0 kW/K となる。これらの条件および結果を T - Q 線図上に表現したものを Fig. 5 に示す。ここで Fig. 5 中の 2 本の曲線のうち下方の曲線は Eq. (4) の関係であり、上方の曲線は Eq. (2) の関係を対応する段間の交換熱量が横軸上で一致するように移動させたものである。これにより Fig. 5 中の幅 Q_T の範囲での両曲線の温度差が Eq. (6) の ΔT_{max} を表すことになる。また Fig. 5 中の 2 本の折れ線のうち上方が濃縮部の実際の段の温度と塔頂からその段までの除熱量を、下方が回収部の実際の段の温度と塔底からその段までの加熱量をそれぞれ表している。ただし下方の折れ線は原料供給段を含んでいる。幅 Q_T の範囲におけるこれら二つの折れ線の間の温度差が実際に段間熱交換に使われた温度差 ΔT_i となる。 ΔT_i は濃縮部回収部それぞれ下から 3 段目の組が 6.9 K で最小となってい

Fig. 5 T-Q diagram in the case of example 2

る。Fig. 5 からわかるように、一般にこの図上で ΔT_i が最小となる Q の位置と ΔT_{max} が最小となる Q の位置は必ずしも一致しない。

さてこの濃縮部操作圧で ΔT_{max} の値は十分に大きい。Fig. 5 によれば濃縮部回収部それぞれ下部の段の組で、 ΔT_{max} と ΔT_i の温度差が大きく、これが原因となって濃縮部操作圧をこれ以下に大きくは下げられない。Fitzmorris¹⁾, Mah³⁾らは全段熱交換型の段間熱交換蒸留塔について、その省エネルギー評価を行ったが、この温度差は熱交換を行わない段をリボイラの上部に設置することにより小さくできる。前報⁶⁾で提案した段数計算法は濃縮部側から段数計算を行うものであったが、McCabe-Thiele法と同様に回収部からでも設計を進められる。そこで回収部においてリボイラの上部に熱交換しない段を設け、かつ熱交換段数はFig. 5と同じ濃縮部回収部各20段とした場合の結果をFig. 6に示した。ここで熱交換段において熱交換に必要な最小の温度差はTable 1に示すように5Kと仮定した。計算はまず操作圧を決めて段数計算を行い、その結果において各段の温度差の最小値が5Kとなるように操作圧を変更する手順で行った。回収部で熱交換しない段を12段設けると必要なUA値は14.0kW/Kから23.0kW/Kとなるが濃縮部操作圧は0.1722MPaに下げることができ、その結果圧縮機負荷は24%削減される。この場合の熱交換の温度差が最小値5Kとなるのは濃縮部の下から6段目と回収部の下から18段目の組である。また ΔT_{max} の最小値は8.6Kとなる。熱交換しない段では加熱量は Q_B に等しく温度だけが上段へ行くに連れて低下するが、その温度の最小値はEq. (2)により計算することができる。

操作圧により平衡関係が変化するので R_{MAX} の最小値

Fig. 6 T-Q diagram in the case of example 3

Fig. 7 T-Q diagram in the case of example 4

も操作圧に伴って変化する。この場合は濃縮部の操作圧の低下により R_{MAX} の最小値も小さくなる。そこでさらに R_{MAX} を小さくして1.54と設定したときの結果をFig. 7に示す。Fig. 7では、 ΔT_{max} の最小値は6.3Kである。熱交換しない回収部の段数を15段としたとき、UA値は10.3kW/K、熱交換段は45×2段必要となるが、濃縮部操作圧は0.164MPaまで下げることができ、これにより圧縮機負荷はFig. 5の場合よりも37%小さくなる。

以上の結果をTable 2にまとめて示す。ここで Q_{PRE} , Q_V はそれぞれ液の膨張、蒸気の圧縮後も流れが二相流にならないために用いる補助的な熱負荷である⁶⁾。圧縮機効率が1でないことによる熱は熱損失として系外に出るものとする⁶⁾。また通常塔と比較した加熱負荷の軽減の大きさを概略的に見るできるようにTable 2に、

Table 2 Calculation results

Example	1	2	3	4
Operating pressure of rectifying section [MPa]	0.1570 Minimum condition	0.2026	0.1722	0.1641
R_{MAX} [-]	1.48	1.8	1.8	1.53
Ideal stages N_r [-]		1	1	1
N_s [-]	infinity	1	12	15
N_{ex} [-]		20×2	20×2	45×12
AU [kW/K]	infinitesimally small	14.0	23.0	10.0
Q_B [kW]	1670	1740	1705	1680
Q_C [kW]	1510	1490	1500	1500
R_{MIN} [-]	0.0	0.0	0.0	0.0
W^* [kW]	189	335	258	213
Q_{PRE} [kW]	95	90	96	95
Q_V [kW]	187	370	273	215
COP [-]	12.33	6.75	8.91	10.89
$Q_B + 3W + Q_{PRE}$ [kW]	2332	2835	2575	2414

* Compressor efficiency = 0.8

全負荷に相当する ($Q_B + 3W + Q_{PRE}$) の値を示した。ここで圧縮機動力 W は電力であるため 1 次エネルギーに換算して評価する目的で発電効率を考慮し、3 倍の値を採用した。

実際の塔の設計は設備費と運転費を総合的に判断して行われるべきであるが、以上に示したように段間熱交換蒸留塔では段間の熱交換に必要な温度差を決めれば、 R_{MAX} および R_{MIN} により所要段数および必要伝熱面積、そして分離に必要な各エネルギー量を求めることができる。したがってこれらを変数とすることにより、ある評価関数を与えて、最適なシステムの構成を見いだすことが可能となる。

結 言

本研究では段間熱交換蒸留塔の操作圧力に関する考察を行い、全ての熱交換段での熱交換温度差が要求される値以上になり、かつ濃縮部と回収部の間の操作圧力差が最小となる条件を明らかにし、その決定法を示した。この操作圧力差の最小値により、与えられた分離条件を段間熱交換蒸留塔で達成するのに必要な圧縮機所要動力の最小値が計算できることを示した。また提案した方法の有効性をベンゼン/トルエン系の分離を例として示し、段間熱交換蒸留塔の省エネルギー性について具体的に明

らかにした。

Nomenclature

A	= heat transfer	[m ²]
B	= flow rate of bottom	[kmol/s]
COP	= coefficient of performance defined by Eq.(11)	[-]
D	= flow rate of distillate	[kmol/s]
F	= flow rate of feed	[kmol/s]
f	= a function of calculating the limiting temperature in the rectifying section	[-]
g	= a function of calculating the limiting temperature in the stripping section	[-]
N_{ex}	= the number of heat-exchange stages	[kmol/s]
N_r	= the number of non-heat-exchange stage in the rectifying section	[-]
N_s	= the number of non-heat-exchange stages in the stripping section	[-]
P_r	= operating pressure at the rectifying section	[MPa]
P_s	= operating pressure at the stripping section	[MPa]
Q_B	= reboiler duty	[kW]

Q_c = condenser duty	[kW]	X_B = mole fraction of bottom	[-]
Q_{PRE} = preheating duty	[kW]	X_D = mole fraction of distillate	[-]
Q_T = total heat transferred	[kW]	Z_F = mole fraction of feed	[-]
Q_v = valve cooling duty	[kW]		
Q_i = heat transferred	[kW]	ΔT = temperature difference	[K]
Q_m = the sum of heat transferred from the top stage to the m th stage at the rectifying section	[kW]	λ = latent heat	[kJ/kmol]
Q_n = the sum of heat transferred from the bottom stage to the n th stage at the stripping section	[kW]	<Subscripts>	
q = q value	[-]	m = stage number of rectifying section	
R_{MAX} = reflux ratio at the bottom stage of the rectifying section	[-]	max = maximum	
R'_{MAX} = the ratio of reflux to bottom flow rate at the bottom stage of the rectifying section	[-]	min = minimum	
R_{MIN} = external reflux ratio	[-]	n = stage number of stripping section	
R'_{MIN} = the ratio of reflux to bottom flow rate at bottom	[-]		
T = temperature	[°C]		
T^* = equilibrium temperature	[°C]		
U = overall heat transfer coefficient	[kW/(m ² K)]		
W = compression work	[kW]		
w = compression work per unit flow rate	[kJ/kmol]		

Literature cited

- 1) Fitzmorris, R. E. and R. S. H. Mah : *AIChE J.*, **26**, 265 (1980)
- 2) Flower, J. R. and R. Jackson : *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, **42**, T249 (1964)
- 3) Mah, R. S. H., J. J. Nicholas and R. S. Wodnik : *AIChE J.*, **23**, 651 (1977)
- 4) Naka, Y., M. Terashita, S. Hayashiguchi and T. Takamatsu : *J. Chem. Eng. Japan*, **13**, 123 (1980)
- 5) Nakaiwa, M., M. Owa, T. Akiya, S. Kawasaki, Y. Tanaka and T. Takamatsu: Proc. 3rd APCChE, Bangkok, 182 (1984)
- 6) Nakaiwa, M., M. Owa, T. Akiya, S. Kawasaki, V. Lueprasitsakul, M. Yajima and T. Takamatsu: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **12**, 535 (1986)
- 7) Reid, R. C., J. M. Prausnitz and T. K. Sherwood: "The Properties of Gases and Liquids", 3rd. ed., McGraw Hill (1977)
- 8) Soave, G. : *Chem. Eng. Sci.*, **27**, 1197 (1972)

Operating Pressure of a Plate-to-Plate Heat-Integrated Distillation Column

Masaru Nakaiwa, Masaru Owa, Takaji Akiya
Shigetake Kawasaki and Masahito Sato

National Chemical Laboratory for Industry, Tsukuba 305

Veerapot Lueprasitsakul and Takeichiro Takamatsu

Dept. of Chem. Eng., Kyoto Univ., Kyoto 606

Key Words : Distillation, Energy, Process Design, Heat Pump, Simulation

In this study, the operating pressure of a plate-to-plate heat-integrated distillation column was investigated. A condition of operating pressure was found that minimizes the pressure difference between rectifying section and stripping section, thus saving

separation energy. Also, a procedure is proposed for determining this condition. The minimum value of compression work required for operating this distillation column can be calculated from this condition. Further, a benzene-toluene binary mixture was adopted as a calculation example to show the usefulness of the proposed procedure.

~~~~~