

バッチ蒸留塔のオンライン最適運転

Online Optimal Operation of Batch Distillation Tower

横山 克己^{*1,a}・松田 弘幸^{*2}・栗原 清文^{*2}・栃木 勝己^{*2}

Katsumi Yokoyama · Hiroyuki Matsuda · Kiyofumi Kurihara · Katsumi Tochigi

^{*1} 株式会社オメガシミュレーション(〒169-0051 東京都新宿区西早稲田2-20-9)

^a E-mail : katsumi@omegasim.co.jp

^{*2} 日本大学理工学部物質応用化学科(〒101-8308 東京都千代田区神田駿河台1-8)

多成分系のバッチ蒸留で、実プラントからオンラインデータを得て、数式モデルで最適な条件を計算し、実プラントに戻して運転を行う実用的な方法を考案した。温度と流量の運転データを使って加熱量を推定し、予測計算により制約条件を満たす最適な還流比を求めた。プラントシミュレータを用いて、その操作方法の有効性を確認した。

Keywords ; Batch Distillation, Online Operational Optimization, Parameter Estimation, Reflux Ratio

Received : 16 May 2013 Accepted : 11 July 2013

1. 緒 言

混合物を純成分に分ける分離操作では、揮発度(沸点)の違いを利用した蒸留が工業的に広く使われている。多成分系の混合物を分けるとき、規模の大きな連続プラントでは連続蒸留が採用されているが、溶剤回収や特殊な薬剤の製造などで処理量が比較的少ない場合にはバッチ蒸留が選択されることが多い。3成分以上の多成分混合物を連続蒸留で分けるには、通常主要成分の数だけの塔が必要で、熱交換器やポンプなど付帯の多くの設備を必要とするが、バッチ蒸留塔では留出のタンクを切り替えることで1つの塔で分離できるため、設備では経済的といえる。しかし、常に塔内の状態が連続的に変化するため、その運転設計は容易でない。

一方、バッチ蒸留塔では還流比や加熱量(たきあげ熱量)などを操作することで運転を最適化することができる。1960年代から連立常微分方程式で表現される数式モデルを Pontryagin の最大化

原理を使って解く研究から始まり、これまでに多くの研究者により検討されてきた。Mujtaba (2004)は2000年頃までの21件の研究をタイプ別に整理している。モデルはshurt-cutモデルからrigorousモデルまでの3タイプのどれにあたるか、取り扱う成分数は2成分か多成分か、最適化問題のタイプは最小操作時間問題(P1)か、最大留出量問題(P2)か、最大生産性問題(P3)かあるいはその他かなどである。

これらは制約条件が付いた非線形計画問題(Non-linear Programming)を解くことになるが、その解法として新たな手法を使った最近の研究では、Low and Sorensen(2004)は遺伝的アルゴリズム(Genetic Algorithm)を、Hanke and Li(2000)は焼きなまし法(Simulated Annealing)を使って解いている。しかしながら、このような非線形計画問題を解く手法はあくまで数式モデルの解法であり、実際のプラントに適用することは現実的には難しい。リアルタイムで測定できる量や操作できる量が限られているためである。

オンラインでバッチ蒸留塔から測定データを得て操作しながら最適化を試みた研究はあまり多くない。Noda *et al.* (2001) が多重効用型バッチ蒸留プロセスで最小操作時間を検討している。1 時間ごとに段効率を推定し、効用缶のホールドアップ量や組成を設定して還流比を調節している。Weerachaipichasgul *et al.* (2010) はモデル予測制御を使って還流比を操作して最適運転を試みている。

また、Jain *et al.* (2012) は目標状態に対する現在の状態からの時間に対する傾きを *limiting gradient* とし、その傾きから導出した増加関数を考え、指数曲線と漸近曲線を組み合わせた合計 6 パラメータの曲線に従う増加関数で最適化している。

本研究では、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である温度と流量のみの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ことを検討した。繰り返し温度と流量の測定値から加熱量を推定し、その都度最適な還流比を求めて運転時間を最短にする実用的な方法を提案した。さらに現実のプラントの代わりに仮想プラントを表現できるプラントシミュレータを用いてその有効性を確認した。

バッチ蒸留の数式モデルの解法には、収束計算と数値積分が必要である。また、パラメータの推定には最小 2 乗法計算、最適な還流比を求めするためには制約条件付きの最適化計算が必要になるが、これらはすべてオメガシミュレーション製の EQUATRAN-G (Yokoyama and Oguchi, 1999) で記述して解法した。

2. 対象プラントと数式モデル

2.1 対象プラントとその運転

対象とするプラントは、Fig.1 のような工業的に使われる最も一般的な構造のバッチ蒸留塔を考える。

スチルに液を仕込み、熱源で加熱して蒸発させる。塔頂からの蒸気は全縮器で液化して還流ドラムに受ける。塔頂の圧力は一定になるように制御され、塔内の温度は塔頂とスチルに設置された温度計で測定される。

還流ドラムからの液はポンプで昇圧して還流と留出に分岐する。還流と留出のラインには流量計が設置されており、留出ラインの制御弁で流量制

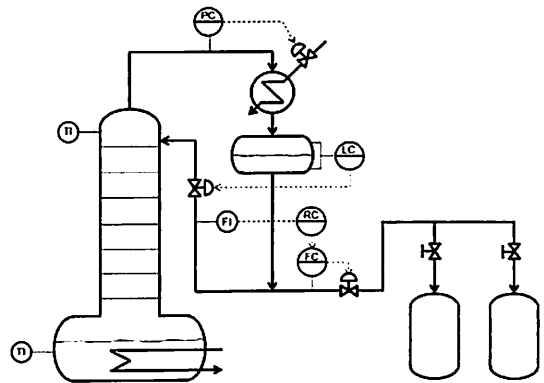


Fig.1 Batch distillation tower

御がなされる。その流量制御器の上位に比率設定器があって還流比が設定できる。還流ラインは還流ドラムの液面制御で制御弁が調整される。すなわち、塔頂蒸気の凝縮液は還流比で留出流量が決められ、残りの量が塔頂に戻されて還流することになる。留出液は仕切弁の付いたタンクに受ける。多成分を分離する場合には、2 つ以上のタンクを用いて、それぞれの留出液を切り替えながら受ける操作を行う。今回は 3 成分系混合物の分離を取り扱い、2 つのタンクとスチルの残液に分けることにした。

運転操作は具体的に以下のように行う。

- 全還流運転

液を仕込んだら加熱をはじめ、全還流運転をプラントが定常状態になるまで行う。定常状態は測定量が一定になった状態とする。

- 第 1 成分の留出

定常状態になったことを確認してから、留出を開始する。第 1 成分を受けるタンクの仕切弁を開き、比率制御器に還流比を設定して留出を始める。留出温度や積算の留出量を監視して、第 1 成分が取得できたタイミングで仕切弁を操作してタンク切り替えを行う。切り替えは第 1 成分と第 2 成分の組成が等しくなるタイミングとする。

- 第 2 成分の留出

タンク切り替えと同時に還流比を変更する。そのまま留出を続け、温度や積算の留出量を監視して、第 2 成分が取得できたら加熱を停止する。こちらも第 2 成分と第 3 成分の組成が等しくなったタイミングとする。第 3 成分はスチルの残液として得る。

2. 2 数式モデル

使用するバッチ蒸留の数式モデルは、Mujtabaの分類でタイプIVの厳密モデル(Rigorous Model)にあたり、各段のホールドアップを考慮に入れ、各段での物質収支と熱収支を考えたモデルである。コンデンサ(全縮器)と塔内各段のホールドアップ量は一定とし、スチルのホールドアップ量は時間変化する。コンデンサを1段、スチルを N 段とした。

気液平衡関係には、蒸気圧に Antoine 式を、活量係数に NRTL 式を用いて推算した。また、気相および液相エンタルピーは温度の2次式で近似した。

ここで使用した数式モデルは前報(Yokoyama *et al.*, 2011)と同じものを使用したのでここでは省略する。

3. オフラインでの事前検討

3. 1 還流比の操作方法

オンラインの最適運転の検討に先立って、オフラインで還流比の操作方法について検討した。理想溶液系(ベンゼン+トルエン+ p -キシレン系)について、3タイプの還流比操作を行って、操作時間を最短にする操作方法を検討した。Mujtabaの分類ではP1にあたる。

この後で検討するオンラインではスチルでの有効な加熱量に変化するものとして推定したが、事前検討ではこの加熱量は一定であるとした。

還流操作は工業的には一定で運転されているケースが多い。しかしながら、第1成分の留出開始時には組成も高く還流比はそれほど必要ない。また一方、蒸留が進むと低沸点成分の組成が下がってくるため、還流比を増やして精製を進める方法が有効である。

還流比を増やしていくもっとも簡単な方法は、還流比を一定の割合で上げることであるが、その変化率は検討する必要がある。また、留出組成を一定に保てるように還流比を操作すれば短時間に濃度の高い成分が得られることが予想される。しかし、工業的な運転では組成をリアルタイムに測定することは容易でない。そこで代わりに通常測定されている塔頂温度を一定に保つように操作することを考える。3成分系では等沸点になる組成

の組み合わせは多数存在する。しかし、バッチ蒸留では分離して取り出そうとしている成分の留出組成が高く、組成変化は連続的に一方向になるため、その成分の低下は温度の上昇として表すことができる。適切な塔頂温度を設定し、温度が一定になるようにPI制御計算で還流比を求めた。ただ、温度一定の調整は後半には設定温度との乖離が大きくなり、還流比は指数関数的に増加することになるため、上限を設けることにした。以上からつぎの3ケースを比較検討することにした。

- ・還流比一定(Constant)
- ・還流比を直線的に増加させる(Ramp-up)
- ・塔頂温度で制御し、還流比に上限を設ける(Temp. Control)

留出の要件は、得られた留出液の組成と仕込量に対する収率とし、いずれもスペックした値以上得ることを条件とした。

3. 2 最適化計算による検討

運転条件を以下のように設定して検討した。

- ・理論段数 13 段
- ・リボイラ加熱量 985 MJ/h
- ・仕込み量 100 kmol
- ・仕込み組成 Benzene, Toluene, p -Xylene = 40, 30, 30 mol%

第1成分(ベンゼン)と第2成分(トルエン)の組成と収率の条件をそれぞれ以下のように設定した。

- ・第1成分組成 95 mol%以上
- ・第1成分収率 93 mol%以上
- ・第2成分組成 86 mol%以上
- ・第2成分収率 87 mol%以上

以上の問題設定で、これは制約条件付き非線形計画問題にあたり、以下のように定式化できる。

$$\text{Minimize } t_F \quad (1)$$

$$\begin{aligned} & R \\ & \text{subject to} \quad \text{Model Equations} \\ & \quad x_D \geq x_D^* \\ & \quad e_D \geq e_D^* \end{aligned}$$

ここで t_F は操作時間、 R は還流比、 x_D は留出組成、 e_D は留出収率を表しており、*付きはそれぞれスペックした値である。

直線的増加(Ramp-up)では変化率を独立変数にし、塔頂温度制御(Temp. Control)ではP動作のゲ

Table 1 Calculation results of batch distillation

	Time [h]	Distillate [mol%]				Residual [mol%]	
		Benzene		Toluene		p-Xylene	
		Comp.	Yield	Comp.	Yield	Comp.	Yield
Constant	13.31	96.1	93.0	86.0	87.5	95.2	86.2
Ramp-up	10.17	95.0	93.9	86.0	87.0	96.2	85.1
Temp. Control	10.10	95.0	93.0	86.0	87.4	96.6	86.1

インと還流比上限値を独立変数にして、制約条件を満たしたうえで操作時間を最短にする最適化計算を行った。

計算結果をTable 1に示した。そのときの還流比の変化をFig. 2に、留出組成変化をFig. 3に、塔頂温度変化をFig. 4に示した。塔頂温度を制御したケースでは還流比が指数関数的に増加しているが、第1成分と第2成分で様相は異なっている。切り替え後に第2成分を留出する場合には、まだ第1成分が残っており、温度を一定にする操作があまり効果を上げていないためと思われる。

直線的増加、塔頂温度制御はともに還流比一定操作よりも約24%の時間短縮をはかれることがわかった。また、直線的増加と塔頂温度制御では操作時間に大きな差はなく、より簡便な操作である還流比を直線的に増加させる方法で十分であることがわかった。なお、今回のスペック条件では多くの時間短縮がはかれたが、組成や収率のスペックの与え方に依存するため、条件ごとにこのような計算を行って、どの程度時間短縮できるか検討が必要である。

4. オンライン最適運転

4.1 最適運転の手続き

これまでの検討で、還流操作は還流比を直線的に増加させればよいことがわかったので、つぎにプラントにオンライン接続して、リアルタイムで調節しながら運転を最適化することを考える。

バッチ蒸留計算では加熱量 Q_r を与える必要があるが、実プラントでは熱媒との温度差変化や放熱の影響、さらに還流比を設定し制御器を使って流量制御するため、制御器の遅れや塔内の状態変化の遅れなどから、有効な加熱量を正確に見積もることが難しく、常に変化している。

そこでこの加熱量をリアルタイムで推定し、その加熱量に見合う最適な還流比を推定して実プラ

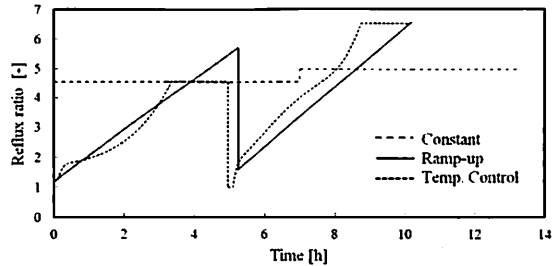


Fig. 2 Reflux ratio operation of batch distillation

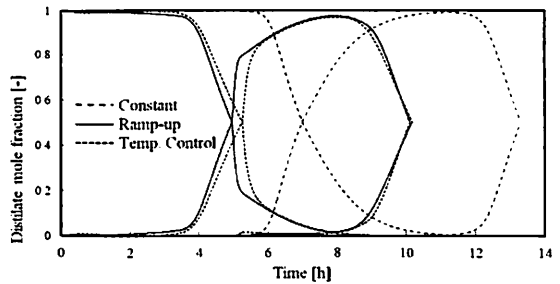


Fig. 3 Distillate component profile of batch distillation

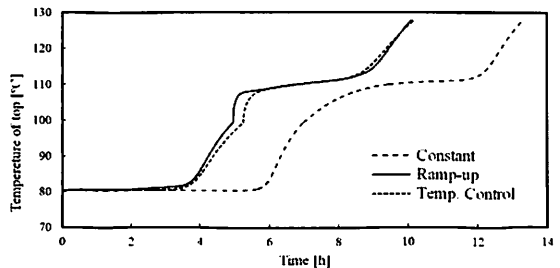


Fig. 4 Temperature profile of batch distillation

ントを運転することを考える。Fig. 5にこの手続きのブロック図を示した。このループを短時間ごとに繰り返して逐次還流比を変更しながら運転する。

(a) 加熱量の推定

Fig. 6に示すように、実プラントから測定されている塔頂およびスチルの温度と留出積算流量を取得し、これに当てはまるように加熱量 Q_r を推

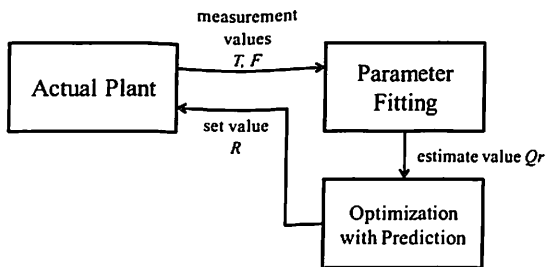
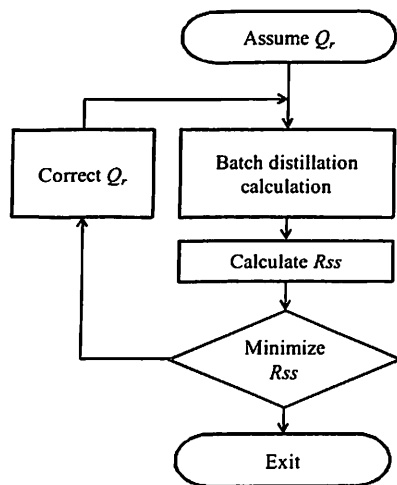


Fig.5 Block diagram of operational policy



R_{ss} : Residual sum of squares of measured and calculated values

Fig.6 Block diagram of estimation of reboiler duty Q_r

定する。

加熱量 Q_r を仮定してバッチ蒸留計算を行うとその時点での状態量が計算できる。その計算値と、温度や留出積算流量の測定値との残差平方和が最小となるように最小 2 乗法計算を行って加熱量 Q_r を決定する。

(b) 予測計算を用いた還流比決定

推定した加熱量 Q_r を使って、その先の運転を計算し、留出組成や収率の条件を満たし最短時間になるような還流比 R の変化率を決定する。

このバッチ蒸留計算に使用するモデルは 3.1 節で構築したモデルと同じものである。

なお、実プラントを全還流運転して温度分布のデータを得ておき、定常状態モデルを使って理論段数とホールドアップ量を事前に調整しておく。

4. 2 プラントシミュレータを用いた検証

以上の操作方法の有効性を確認するために、実プラントの代わりに、プラントシミュレータ Visual Modeler (オメガシミュレーション製) 上に構築した仮想プラントを使って検証した。Visual Modeler の蒸留塔モデルは空の状態から運転することができ、実プラントと同様に計測器や制御器を設置して、運転を再現することができる。

Fig. 7 に構築したモデルを示した。取得するデータは塔頂温度 (TI101)、スチル温度 (TI110)、留出流量 (FI102) の 3 ヲ所であり、設定するのは還流比 (RR) である。

ベンゼン+トルエン+p-キシレン系を対象とし、仕込み量、仕込み組成やスペックの組成と収率は事前検討と同一とした。

全還流運転で定常状態に到達したら、その時点から還流比を設定した運転を行う。なお、還流量は液面制御で決まり、還流量に対する比率制御で留出流量をカスケード制御する。塔頂は常圧 (101.3 kPa) になるように制御されている。

まず、還流比一定の運転を行った。制約条件を満たすように還流比を変更したケーススタディを行って、還流比は事前検討と同様な値である、第 1 成分の留出では 4.6、第 2 成分の留出では 5.0 とした。この結果、運転時間は全体で 13.4 h を要した。

つぎに 0.2 h おきに加熱量を推定し、還流比を設定しなおして運転した。計算の間隔は小さくするのが望ましいと考えているが、加熱量の推定と還流比の予測計算にあわせて数分程度かかるため、計算間隔は 0.2 h とした。Fig. 8 に結果を示した。運転時間は 10.2 h になりおよそ 24% 短縮できた。それぞれのタンクには 3.15 kg、2.80 kg 取得でき、第 1 成分 (ベンゼン) と第 2 成分 (トルエン) の組成と収率は

- ・第 1 成分組成 95.0 mol%, 収率 94.4 mol%
 - ・第 2 成分組成 86.1 mol%, 収率 87.2 mol%
- となりスペックを満たした。

オフラインの事前検討では加熱量を一定として各成分で最適な還流比の変化率を求め、その変化率一定で操作したが、オンラインの検討では加熱量を逐次推定し、それに応じた最適な還流比の変化率をその都度調整して操作した。より現実に即

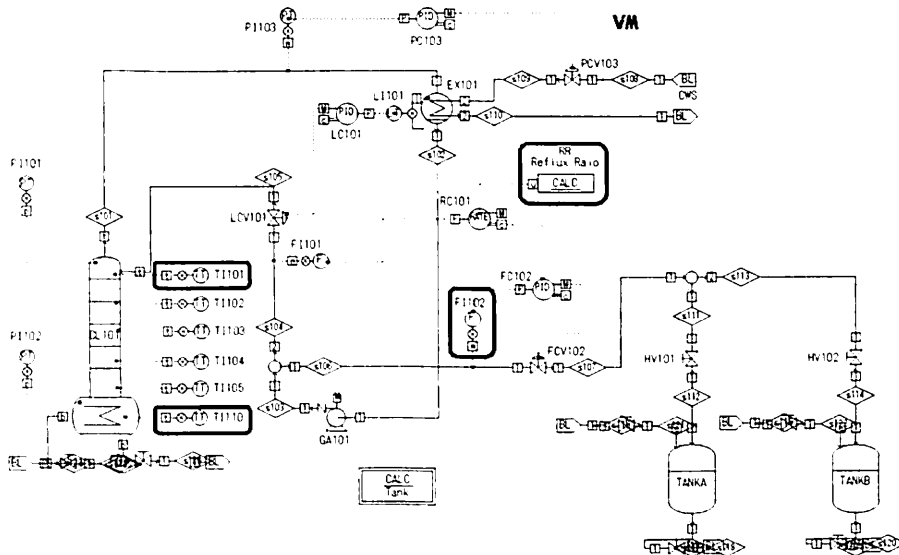


Fig.7 Batch distillation model on Visual Modeler

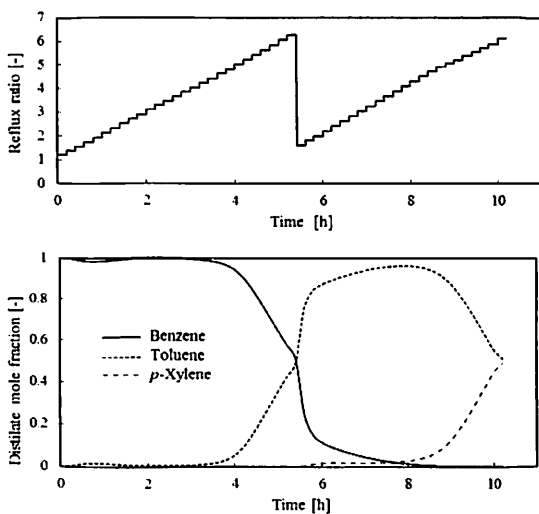


Fig.8 Simulation result of online optimal operation

した操作方法になっており、推定した加熱量は 948～1029 MJ/h の間で変化していた。今回のシミュレーションでは外気温の影響などは組み込んでおらず、現実のプラントではさらに多くの外乱が加わるものと思われ、この操作方法が有効であると考えられる。

なお、バッチ蒸留では、製品の切り替えのタイミングで一部をオフスペックとして取り出すことも行われるが、今回の検討では操作をより単純化して検討するために省いた。オフスペックを取り

出す場合でも、本方法はそのまま適用することができる。

5. 結 言

3成分系を分離するバッチ蒸留塔を対象に、実プラントから通常計測されている塔頂温度、スチル温度、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、その先の予測計算で操作時間を短縮する最も適切な還流比を計算して、実プラントに繰り返し設定して運転する方法を提案した。事前に還流比の操作方法を検討し、一定の変化率で増加させる操作方法が簡単であり、十分時間短縮できることがわかった。実プラントの代わりにプラントシミュレータを使って検証を行い、この操作方法の有効性を示すことができた。

Nomenclature

- e_D = yield of distillate [-]
- F = flow rate [kg h^{-1}]
- N = number of stages [-]
- Q_r = reboiler duty [MJ h^{-1}]
- R = reflux ratio [-]
- T = temperature [$^{\circ}\text{C}$]
- t_F = time of operation [h]
- x_D = mole fraction of distillate [-]

Literature Cited

- Hanke, M. and P. Li; "Simulated annealing for the optimization of batch distillation processes", *Comput. Chem. Eng.*, **24**, 1-8 (2000)
- Jain, S., J. Kim and R. Smith; "Operational Optimization of Batch Distillation Systems", *Ind. Eng. Chem. Res.*, **51**, 5749-5761 (2012)
- Low, K. H. and E. Sorensen; "Simultaneous optimal design and operation of multipurpose batch distillation columns", *Chem. Eng. & Processing: Process Intensification*, **43**, 273-289 (2004)
- Mujtaba, I. M.; *Batch Distillation - Design and Operation*, Imperial Collage Press, London (2004)
- Noda, M., A. Kato, T. Chida, S. Hasebe and I. Hashimoto; "Optimal Structure and On-line Optimal Operation of Batch Distillation Column", *Comput. Chem. Eng.*, **25**, 109-117 (2001)
- Weerachaipichasgul, W., P. Kittisupakorn, A. Saengchan, K. Konakom and I. M. Mujtaba; "Batch distillation control improvement by novel model predictive control", *J. Ind. Eng. Chem.*, **16**, 305-313 (2010)
- Yokoyama, K. and G. Oguchi; "Application of Equation-solver EQUATRAN-G for Separation Process Engineering", *Proceedings of the 5th International Symposium on Separation Technology between Korea and Japan*, 217-220, Seoul (1999)
- Yokoyama, K., Y. Motohashi, H. Matsuda, K. Kurihama and K. Tochigi; "Study of Multi-Component Batch Distillation Calculation with Parameters Estimated Using Simple Distillation", *J. Chem. Eng. Japan*, **44**, 256-265 (2011)
- Yokoyama, K., H. Matsuda, K. Kurihama and K. Tochigi; "自動気液平衡測定装置によるNRTLパラメータ決定と留出曲線マップによるバッチ蒸留の検討", *Kagaku Kougaku Ronbunshu*, **39**, 1-8 (2013)

Online Optimal Operation of Batch Distillation Tower

Katsumi YOKOYAMA *¹, Hiroyuki MATSUDA *², Kiyofumi KURIHARA *² and Katsumi TOCHIGI *²

- *1 Package Development Department, Simulation Business Division, Omega Simulation Co., Ltd., 2-20-9, Nishi-waseda, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0051, Japan
- *2 Department of Materials and Applied Chemistry, Nihon University, 1-8, Surugadai, Kanda, Chiyoda-ku, Tokyo 101-8308, Japan

In the multi-component batch distillation, a method to get online data from the actual plant, to calculate the optimal conditions by the mathematical model and to do it back to the actual plant operation was devised. The heat duty was estimated using measurement data of temperatures and the flow rate and a suitable reflux ratio to meet constraints was determined by the predictive calculation. The plant simulator was used instead of the real plant to confirm its availability.