

ポリマープラントのシミュレーション

Simulation of Polymer Plant

機械事業本部 佐藤文昭*¹

技術本部 大本節男*² 桑田知江*³

広島製作所 小笠原弘明*⁴

付加重合系ポリマーの反応は発熱反応であり、反応器の温度制御は安定運転を行うための重要な因子である。また、反応器内の現象をシミュレートすることは、反応器の性能評価や製品品質向上のための指針を得る上で有益である。動的挙動解析用プログラム CPDS (Chemical Process Dynamic Simulator) を重合反応器に適用して非定常時の温度挙動をシミュレートした結果、実測値と一致する結果を得た。さらに、反応・流動・伝熱を考慮した三次元熱流動解析ソフトにて、反応器内の温度・濃度分布を推算することが可能となった。以上のシミュレーションにより、非定常時を含めた反応器の最適制御が可能となり、また、反応器の設計や改良に活用できる見通しを得た。

It is important to understand the phenomena of the interior of a polymerization reactor including reaction & heat transfer for ensuring product quality and stable operation. We have applied two simulation programs to polymerization reaction to quantify the phenomena in the reactor. The dynamic simulator, CPDS (Chemical Process Dynamic Simulator) did simulate the process dynamics of the reactor, which verified the data of the plant. The results were applied to optimum control of unsteady state operation. The RFLOW model which consists of reaction/flow/heat transfer analyzed the interior conditions of the reactor, and temperature & concentration profiles were obtained. It is useful and prospective to apply the RFLOW model to optimum reactor design and optimization of operations.

1. ま え が き

ポリマーの連続重合プラントは、石油化学プラントと同様の単位操作の組合せであるが、次のような特徴がある。

- (1) 重合反応器の性能が製品ポリマーの収率や品質に対して大きく影響する。
- (2) 生産速度変更や銘柄変更などの非定常操作がある。
- (3) 高粘度流体を取扱う。

特に付加重合系では発熱反応であるため、反応温度制御は暴走反応を抑制し、安定運転を維持する上で重要である。また、反応器内の温度・濃度分布等を推算することは、反応器の性能評価や製品品質向上の指針を得る上で有益である。

当社はこれらに対応するため、動的挙動解析用の汎用シミュレータ CPDS (Chemical Process Dynamic Simulator) を重合プロセスに適用し、安定運転の指針確立、制御システムの改良、非定常時の最適操作の確立に使用している。さらに、重合反応器に対しては、反応、流動・伝熱を考慮した三次元の熱流動解析ソフト (RFLOW) を用いて、反応器内の温度、濃度分布をシミュレーションし、反応器の設計や操作条件の最適化に活用している。

本報は、付加重合系並びに重縮合系プロセスへの CPDS の適用例を紹介するとともに、RFLOW による反応器内の解析例を紹介する。

2. シミュレータの概要

2.1 ダイナミックシミュレータ (CPDS)

CPDS は、スタートアップ/シャットダウン時の非定常な運転過程、制御系の動特性検討、負荷変動時のプロセス挙動等、化学プラントの動的な挙動を解析するために当社独自で開発した汎用ダイナミックシミュレータである。システムは、次の3つのプロセスから成る。第1は、ユーザのインプットデータ及びライブラ

リデータからプロセスモデルを構築して演算順序を決定し、数式コードに変換する Input Processor。第2は、Input Processor が作成したファイルを入力し、多元連立非線形方程式で定式化された問題の解を求める Analysis Processor。第3は、Analysis Processor が作成した結果の時刻歴ファイルを入力し、ユーザの希望する変数データをプリンタ及びプロッタに出力する Post Processor である。本シミュレータは、プロセスの最適設計や制御ロジック最適設定等を可能にするツールとして有効である。

2.2 攪拌槽内の熱・流動解析シミュレータ

攪拌槽型反応器内の温度、濃度場の解析手法は、汎用熱流動解析ソフト“RFLOW”の機能を拡張し、対象プロセスに必要な反応速度式、伝熱式及び気液平衡式等を組込むことにより流動、反応、伝熱、物質移動等を連式解析する方法である。攪拌槽内での混合の良否は、製品品質を大きく左右するばかりでなく、局所的な温度の上昇がプラントの運転に異常をもたらすこともある。そのため槽内の流動状態並びにこれに起因する温度や濃度分布をシミュレーションにより解析、定量化し、製品品質の安定化や反応器の最適操作条件の選定等の指針として活用することは非常に有益である。

3. 適用例

3.1 CPDS の適用例

3.1.1 付加重合系多段反応器への適用⁽¹⁾

本適用例は、液相付加重合用多段反応器を対象とし、制御系を含めた非定常時のオペレーションの最適化を主目的としたものである。多段反応器は、攪拌室、熱交換器が交互に積み重なる構造であり、各攪拌室は熱媒ジャケットを有している。各攪拌室は単独の熱媒循環ループを持たず、攪拌室の温度は反応器を幾つかに分割して、それぞれ独立して設置されたループにより制御されている。図1(a)にフィードフォワード・フィードバック制御系 (以

*1 化学プラント技術センタープロジェクト部
プロセスグループ主務

*2 広島研究所化学プラント研究推進室

*3 広島研究所制御システム研究室

*4 原動機・風力機械技術部プラント設計二課

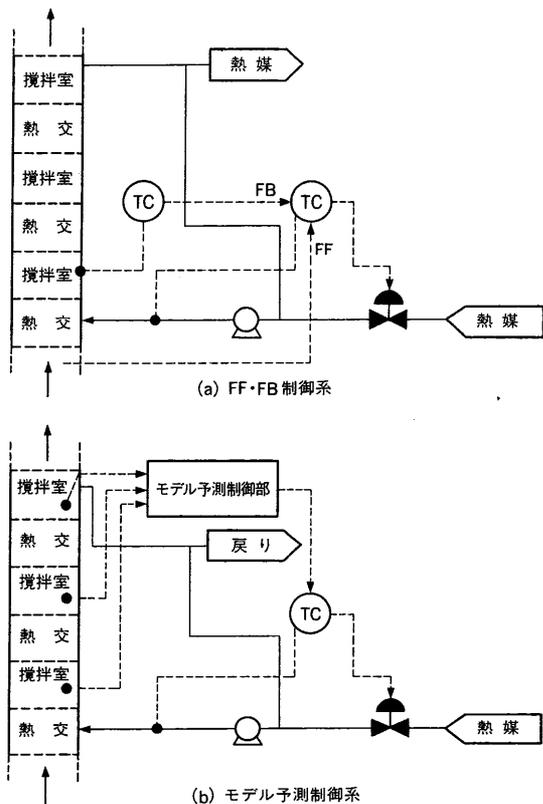


図1 多段反応器の概要 多段反応器の制御系の違いを示す。
Structure of multi stage reactor

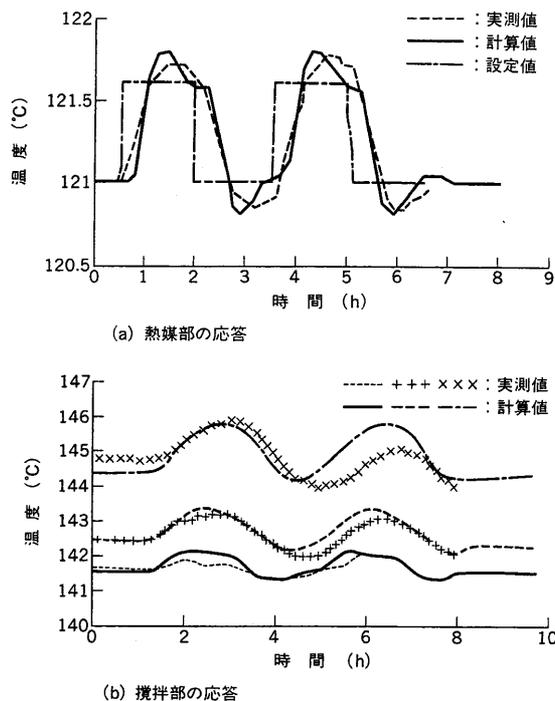


図2 熱媒部と攪拌部の温度応答図 負荷変動に対する温度の計算値と実測値の比較を示す。
Temperature response of hot oil & process fluid

下FF・FB制御と略す)を、(b)にモデル予測制御(以下MPCと略す)を付加した系を示す。

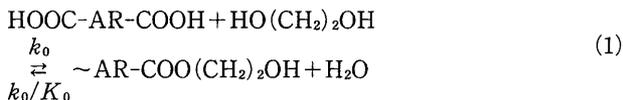
モデルの検証は、実プラントに負荷変動を与えて行った。負荷変動は、熱媒温度設定値を一定時間ごとに上下に変化させた。

プロセス部と熱媒部の実測値とシミュレーション計算値の比較を図2に示す。本結果を周期、振幅について実測値をベースにし誤差率を表1にまとめた。表1から本モデルと実機の特性値は良く一致しており、モデルの妥当性が確認された。一方、制御方式については、FF・FB制御では前段からのポリマー温度変化に対し、制御している攪拌室温度はコントロールされるが、他室は無制御となり、後段の制御に悪影響を及ぼすという問題が生じた。これに対してMPC制御を付加した場合は、前段に起因する温度変化に対して速やかに応答できるだけでなく、生産速度変化に対しても、制御系も含めて安定に追従することが分かった。本ダイナミックシミュレータは、付加重合系の最適運転条件の選定や制御系の改良指針のツールとして、また、反応系の安全運転性を確保する上で、十分適用可能と判断できる。

3.1.2 ポリエステル重合プラントへの適用

重縮合系ポリマーは、ジカルボン酸と2価アルコールを原料として、エステル化反応、次いで重縮合反応によって製造されている。代表的な反応式を次に示す。

エステル化反応



重縮合反応

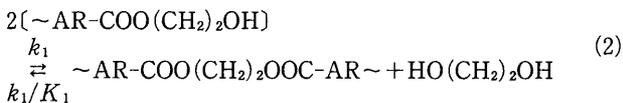
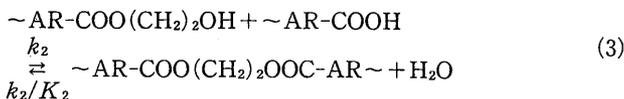
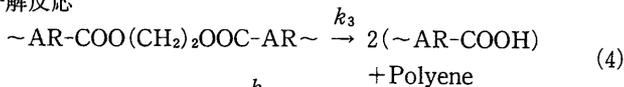


表1 モデル検証評価
Evaluation of model

	周 期	振 幅
攪拌室 1	-11.4%	14.8%
攪拌室 2	-3.8%	2.1%
攪拌室 3	1.3%	18.5%



熱分解反応



上記反応式中、 $k_0 \sim k_4$ は反応速度定数、 $K_0 \sim K_2$ は平衡定数であり、ARは6員環を示す。重縮合反応は、縮合によって生成する副生物との平衡反応であるため、反応副生物の物質移動が重要となる。物質移動のモデルは、高粘度ポリマーと副生物間の気液平衡並びに拡散係数を推算し、ポリマー表面からの物質移動量を計算している。なお、ポリマー表面積については、攪拌翼形状や回転数等の操作条件の因子となるため、ユーザのインプット条件とした。

図3に、連続重合プロセスの構成ユニットの一例を示す。このプロセスは、エステル化槽(tank 1)、予備重合槽(tank 2)及び重縮合反応器(tank 16~25: 1槽を10分割した逆混合モデル採用)の3つの反応器で構成したものであり、それぞれのユニットごとに物質収支、熱収支を解いている。

本シミュレータを用いることで、定常解析による反応器数の決定や各反応器の操作条件の選定など、重合プロセスの最適設計が図れるとともに、非定常解析により負荷変動時のジャケット熱媒温度や流量等の適正制御方法の検討や、出口ポリマーの重合度制

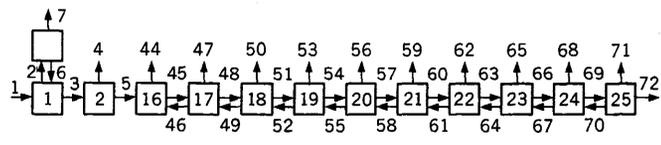


図3 連続重合プロセス構成ユニット 連続重合設備の解析模式図を示す。
Outline of structure of continuous polymerization process

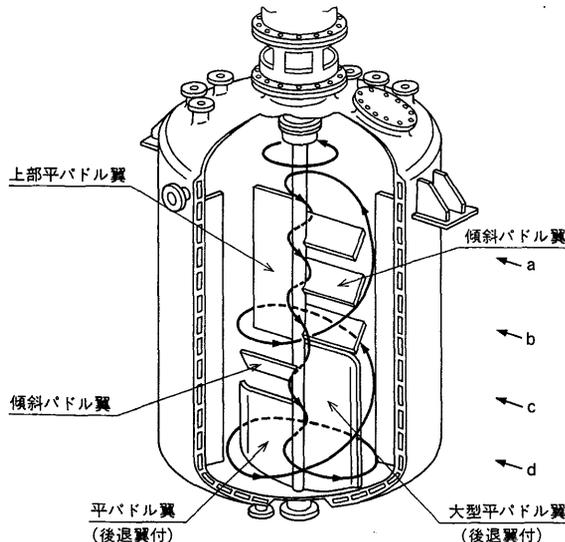


図4 “サンメラ”構造図 新型翼を装置した攪拌槽と典型的なフローパターンを示す。
Structure of SANMELER

御が可能となっている。

3.2 熱流体解析シミュレータの適用例

3.2.1 攪拌翼最適設計への適用⁽²⁾

図4は、低中粘度流体を対象として、当社が開発した攪拌槽“サンメラ”（商品名）である。

新型翼は大きさの異なる大型平バドル翼と傾斜バドル翼から成り、これらを左右非対称に配置したユニークな構造となっている。各翼の寸法・配置などは、三次元流動シミュレーション及び模擬流体を使った各種流動実験により、槽内全域に適正な循環流（上下流）を形成するよう最適化している。

槽内の典型的なフローパターンのスケッチを、図4中に併せて示した。また、三次元流動シミュレーションの結果を図5に示した。図5(a)は、縦及び横断面の速度ベクトルを示す。新型翼開発の主目的とした上下循環流が明確に表れている。図5(b)は、これらの速度ベクトルを半径方向(r 成分)、周方向(θ 成分)、軸方向(Z 成分)別に、各々図4中に示した高さ位置(a, b, c, dの記号で示す)の平均流速を示したものであり、横軸は無次元半径($r/R=0$ が軸中心、 R :槽半径)を、縦軸は流速の絶対値を示す。この中で軸方向速度 V_z は、 $r/R=0.7$ 付近を境界とし、内側が下降流、外側では上昇流となっている。上昇流路と下降流路の断面積がほぼ同一であり、スムーズな上下循環流が形成されている。

これら流動解析結果の検証は、LDA (Laser Doppler Anemometer) 法にて行っており、流動解析結果とLDA測定結果は良好に一致する結果が得られている。

以上のように、本シミュレータは流動の非常に複雑な攪拌槽内の流動パターンを可視化するための1つのツールとして活用しており、反応器及び攪拌翼の最適設計に役立っている。

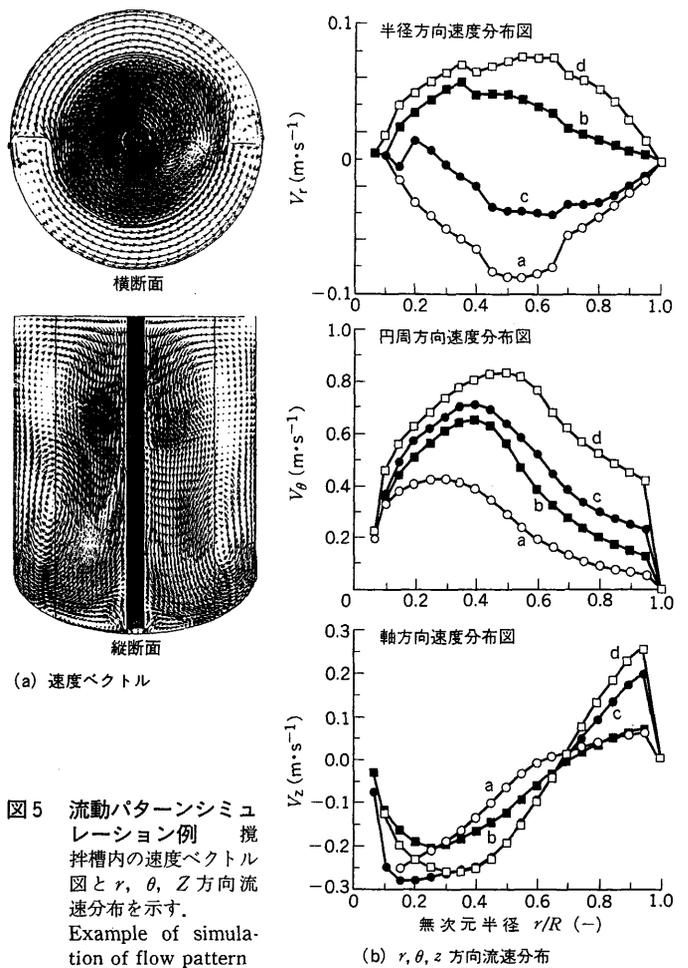


図5 流動パターンシミュレーション例 攪拌槽内の速度ベクトル図と r, θ, z 方向流速分布を示す。
Example of simulation of flow pattern

表2 重合反応解析条件

Simulated condition of polymerization		
	槽型反応器	多段反応器
流量 ($\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$)	1.40	1.40
入口重合率 (-)	0	0.7
入口温度 (K)	293	423
反応温度 (K)	418 (平均値)	423 (入口部)
熱媒温度 (K)	418	403
回転数 (s^{-1})	0.5	0.1
リフラックスの有無	あり	なし
溶媒の添加有無	なし	なし

3.2.2 反応器内温度、濃度分布予測への適用

反応槽内の温度や濃度分布を予測することは、運転安定性確保のみならず、製品品質の管理にとって重要なものである。当社では、重合技術高度化の一環として、流動、伝熱、反応、物質移動（蒸発）を連成解析し、反応槽内の温度、濃度分布を求め、最適操作条件の選定を行っている。液相付加重合反応器への適用例を紹介する。

反応速度式及び物性推算式には、別報⁽³⁾の諸式と数値を用いた。重合反応解析は、槽型反応器と堅型多段反応器について行った。表2に各々の解析条件を、解析結果を図6に示す。図6(a)は、槽型反応器“サンメラ”、図6(b)は、堅型多段反応器の下部4ユニット分を示したものである。双方とも流通系とし、定常解析で得られた温度、濃度分布を等高線図で表したものである。

図6(a)では、原料の流入及び液表面からのモノマーの蒸発に伴う熱移動やリフラックス液の還流もあることから、液表面で

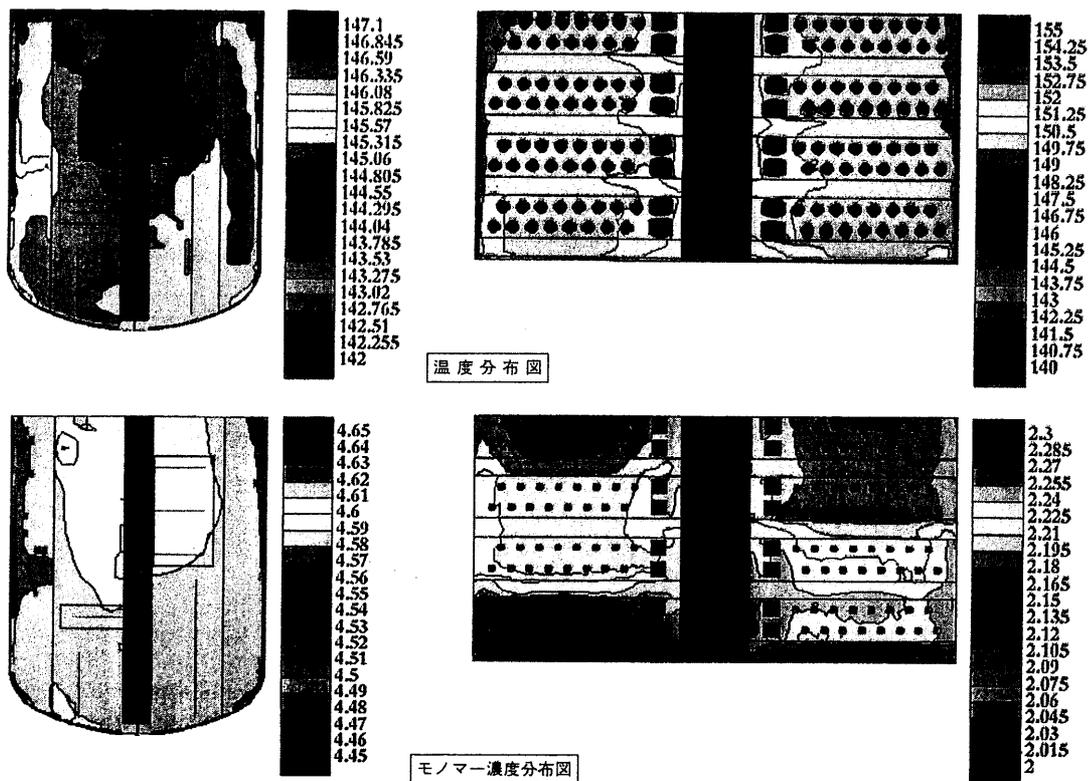


図6 反応器内の温度、濃度分布解析結果 流通系重合反応における定常時の温度、濃度分布を示す。
Simulation results of temperature and monomer concentration in reactor

平均温度に対して約 2°C 低い温度となっているが、ほぼ均一化されていることが分かる。またモノマー濃度も、流入部に高い部分が認められる以外は、槽中央部を下降する間にほぼ均一化されており、十分な攪拌条件となっているものと判断できる。

図6 (b) に示す多段反応器では、反応器外壁及び熱媒コイルにより反応熱を除去するため反応温度より低い熱媒を流している。ポリマーは、図中左中央部のノズル（図示していない）より流入し、熱媒コイル間に設けられた平バドル翼により攪拌されながら、上方へ移動していく。槽壁並びに冷却コイルにより反応熱は除去されており、半径方向に対しほぼ均一な温度分布となって、熱バランスが保たれていることが分かる。また、モノマー濃度は、半径方向にほぼ均一で、軸方向に徐々に低くなっており、良好な押し流れが得られているものと判断できる。

以上に述べたように、熱流動解析シミュレーションは、新規反応器の開発、改良並びに、反応槽内の温度や濃度分布を定量化するツールとして利用できると言える。

4. あとがき

CPDS 並びに熱流体解析シミュレータをポリマープラントに適用し、次の成果を得た。

- (1) CPDS を付加重合系多段反応器に適用し、非定常状態の動特性をシミュレートした結果、実測値と一致する結果が得られ、モデルの妥当性が検証された。本シミュレータは、反応器の最適運転条件の選定や制御性の向上に適用されるだけでなく、プロセス全体の最適化にも応用できることが期待される。
- (2) RFLOW による反応器内の流動・混合シミュレーションは、LDA テスト結果と良く一致し、攪拌機を含む反応器の開発や改良に有用である。また、反応、伝熱、物質移動も考慮した解析は反応器内の温度、濃度分布を定量化でき、製品の品質向上や攪拌条件の選定に適用できる見通しを得た。
今後さらに CPDS や RFLOW の活用により、ポリマープラントエンジニアリングの高度化を図っていく予定である。

参考文献

- (1) 藪亀恭明ほか、多段反応器の動的シミュレーション、第16回 Dynamical System Theory シンポジウム論文集 (1993.12 神戸) p.255
- (2) 大本節男ほか、非対称形状攪拌翼の開発、三菱重工技報 Vol.31 No.5
- (3) 嶋田隆文ほか、重合反応装置、化学工学 Vol.53 No.8 (1989)