

# 内部熱交換式蒸留塔 (HIDiC) の技術開発

## — バイオエタノール蒸留のベンチプラントに至る実証研究 —

片岡 邦夫\*、野田 秀夫

化学産業界における分離技術の主役である蒸留技術の抜本的な省エネルギー化のために、内部熱交換式蒸留塔 (HIDiC) の実用化のための基盤技術開発をNEDOプロジェクトとして遂行してきた。大きな省エネ効果を確認できた本開発技術の普及のために、ソフトバイオマスからの発酵エタノールの蒸留濃縮プロセスに適用を試み、その省エネ効果を実証するベンチプラントを設計・製作・建設することができた。試運転の結果、NEDOプロジェクト「セルロースエタノールの環境調和型統合プロセス開発」において設定された濃縮および省エネの目標を達成でき、成功裏に終了した。この技術中の圧縮機不要のHIDiCが将来のプラントの大型化につながる可能性を有していることも含めて、研究開発とその進め方について論じる。

**キーワード:** HIDiC 蒸留塔、バイオエタノール蒸留、内部熱交換特性、省エネルギー、リフトトレイ、ベンチプラント

## Technological development of internal heat-integrated distillation column (HIDiC)

### – Substantive research of application to a bench plant of bioethanol distillation –

Kunio KATAOKA\* and Hideo NODA

To dramatically reduce energy consumption in chemical industry, we propose to construct a database on fundamental technologies for practical applications of HIDiC, as part of a project funded by NEDO (New Energy and Industrial Technology Development Organization). An application of HIDiC to the distillation process for the enrichment of bioethanol fermented from biomass has been attempted, and a bench plant has been designed and constructed to ensure practical applicability. Testing has shown that the developed HIDiC system achieves the project targets of enrichment and energy savings. We also confirmed that a compressor-free HIDiC system can be scaled to commercial plants.

**Keywords:** HIDiC distillation column, bioethanol distillation, internal heat integration, energy saving, lift tray, bench plant

### 1 はじめに

化学産業の全消費エネルギーの中で、分離技術の主役である蒸留塔が占める割合は一番大きく、約 40 % とも言われており、その省エネ対策が国家的な問題となつて久しい。蒸留塔における省エネ対策を目指して、ニューサンシャイン計画における「広域エネルギー利用ネットワークシステム開発プロジェクト」で「内部熱交換による省エネ蒸留技術の基礎研究」(以下、第一期プロジェクトと呼ぶ)の開発が推進された。さらに、第一期プロジェクト終了後、2002 年度から 4 年間、「地球温暖化防止新技術プログラム」の一環として「内部熱交換による省エネ蒸留技術開発」(以下、第二期プロジェクトと呼ぶ)<sup>[1][2]</sup>が(独)新エネルギー・産業技術総合開発機構(以下 NEDO と記す)の省エネルギー技術開発部のもとで実施された。その目的は、枯渇が危ぶまれる化石資源の消費量の節減すなわち省エネルギー技術の開発であった。本プロジェクト全体を総括

する(独)産業技術総合研究所をリーダーとし<sup>[1]</sup>、丸善石油化学(株)、関西化学機械製作(株)、木村化工機(株)、日本酸素(株)(現 太陽日酸(株))、(株)神戸製鋼所(2002 年度まで)が参画して推進された。省エネ率の目標値としては、同じ蒸留条件の通常塔の消費エネルギーの 30 % 以上の節減と設定された。

このチーム中の石油・化学産業分野のグループは 2005 年 2 月に丸善石油化学(株)千葉工場にシクロペンタン精製プラント(C5-splitter)の第 1 塔(泡鐘段通常塔)を内部熱交換式蒸留塔(HIDiC)化の対象とし、充填塔式 HIDiC パイロットプラントを建設した。連続 1000 時間の試運転を行い、既設第 1 塔と比較して 60 % 以上の非常に高い省エネ率が達成されて大成功となった<sup>[1][3]</sup>。このパイロットプラントでは、混合ガソリンからシクロペンタンを精製するクリーン系を扱うことから、木村化工機(株)が開発した充填塔式 HIDiC が採用された。

関西化学機械製作株式会社 〒660-0053 尼崎市南七松町 2-9-7

Kansai Chemical Engineering Co., Ltd. 2-9-7 Minami-nanamatsu-cho, Amagasaki 660-0053, Japan \* E-mail: kataoka@kce.co.jp

Original manuscript received October 9, 2013, Revisions received March 10, 2014, Accepted March 11, 2014

その選定理由は当時、大学等の蒸留研究には主に充填塔式が用いられていたせいで、第一期、第二期プロジェクトで先に開発がスタートして議論が進んでいた充填塔式 HIDiC のデータが充実していたこと、伝熱面での還流液による濡れを旨くやれば大きな省エネ効果も期待できること、適用対象のシクロペンタン精製プロセスはクリーンな石油系 12 成分からなる混合ガソリンで内部で反応も起きないために充填物の目詰まりや加熱面でのファウリングの恐れがないことであった。

その後、2006 年より 2 年間、この HIDiC 技術の実用化・普及を目的として、産業技術総合研究所主導の HIDiC コンソーシアムによる共同研究が実施された。しかし、HIDiC 技術の省エネ効果の大きさは一般に認知されたものの、上記パイロットプラントに続く実用化の実績がなかなか挙がらず、普及への道が閉ざされていた。その原因は、①石油化学産業は通常、高温熱分解のクラッカーを所有しており、この高温のエネルギー源をカスケード的に有効に使用しているため、蒸留に要する温度レベルの水蒸気は大量に余っている実情があった。②開発された HIDiC は高温プロセス中の蒸気に防爆が必要な大きな排気速度の圧縮機を必要とするため、例えばバイオマスのような汚れ系混合物(発酵残渣となるリグニン、グルカン、灰分、発酵に使われた酵素タンパク質等々を含む)を対象とすることが困難であり、他の産業への展開が困難であった。そこで、当社では、蒸留プロセス中の蒸気に圧縮機を使用しなくても HIDiC のヒートポンプ効果を応用できる、圧縮機なしの HIDiC システムを考案し、特許<sup>[4]</sup>を取得し、その基盤技術開発のために 2007 年から 3 年間、当社独自で NEDO 先導研究プロジェクト<sup>[5]</sup>(以下、第三期プロジェクトと呼ぶ)を実施した。この結果、圧縮機なしでも、目標とした 30 % 以上の省エネ率を十分に達成できることを確認した。

この成果を基に、化石資源に代わる新エネルギー源のバイオマスエネルギーの開発において、その製造コスト削減には使用酵素・酵母のコストだけでなく、分離濃縮の蒸留コストの削減がキーポイントになっていることに着目することにより、NEDO のバイオマスエネルギー等高効率転換技術開発(先導技術開発)の中の「セルロースエタノール高効率製造のための環境調和型統合プロセス開発」(2008～2012)<sup>[6]</sup>に参画して、発酵モロミからのエタノール濃縮プロセスに HIDiC 技術を応用する省エネ技術開発を担当することとなった。(以下、第四期プロジェクトと呼ぶ) 汚れ系であるバイオエタノールの蒸留プロセスという困難な対象に HIDiC 技術を応用したい一心で挑戦し続け、やっと 2012 年にベンチプラントを建設することができた。その試運転の結果、2013 年 2 月に省エネ目標を達成できただけでな

く、将来の応用展開の可能性を示すことができたので、そこに至る経緯に沿って技術開発<sup>[7]</sup>の進め方の論文として報告する。

## 2 技術開発プロジェクトの進め方について

この論文の技術開発の詳細については、3 章、4 章で述べることにし、Synthesiology の観点に立って、第 2 章で、この技術開発をいかに進めたか、また、その道の難題が立ち足る分岐点をいかにブレークスルーしてきたかを分析し、見直しをして、技術開発の方法論の具体例として抽出することとした。

### 2.1 問題点の把握と目的設定

HIDiC 開発が関わる NEDO プロジェクト No.P02020「内部熱交換による省エネ蒸留技術開発」(第二期プロジェクト)の当初の課題は地球温暖化抑止のための京都議定書から発してきたものであり、国家のエネルギー・環境政策の重要問題であった。化学工業の重要プロセスの一つであり、エネルギー消費が大きい蒸留プロセスの消費エネルギーを節減することができれば、原油輸入量を減らせるだけでなく、CO<sub>2</sub> 排出量の削減にも大きく貢献できることから本プロジェクトは立ち上げられた。化学プロセスの省エネ技術としては、石油ショック後のフローシステムの無駄を省く合理化技術やプロセス改良、その後の多重効用技術等が当時すでに実現していたが、省エネルギーのためのプロセス改善が相当に進められていた日本の化学工業にとって、さらに大幅なエネルギーの節減を迫られても、簡単な方法はなく、抜本的な技術開発が必要であった。そこでチャレンジしようと着目されたのが、ヒートポンプ原理を応用した内部熱交換式蒸留システムであった。このプロセスシステムの工学的アイデアは Mahら<sup>[8]</sup>によって発表されたが、誰にも注目されず、廃案のような状態であった。その原因はシステム工学的解析のみの論文であり、トータルシステムはサブシステムの繋がりを単なるブラックボックスの連結で表現されており、蒸留工学分野からは実現の可能性があるかどうか、あまり理解されず、議論もされず、実際の蒸留塔の具体的な塔内構造もイメージしにくかったこと、また回収部から濃縮部へ入る蒸気を防爆で大きな排気速度の圧縮機で圧縮することには蒸留工学の立場からは違和感があったこと、などが考えられる。それに気づいた京都大学の故高松武一郎教授が音頭をとり、これを何とか実用化するために、技術開発プロジェクトとして立ち上げようとしたのが発端であった。

最初に提案された標準型内部熱交換式蒸留塔 HIDiC<sup>[8]</sup>の構造とそのフローは二重管式で表すと図 1 のようになる。原料供給段より下にあるべき回収部の頂部から排出してき

た蒸気を圧縮機で加圧してから原料供給段より上にあるべき濃縮部の底部へ圧入する。圧縮機による加圧で回収部より沸点が上昇した濃縮部を回収部と熱的接触させると濃縮部で塔内を上昇する蒸気の部分凝縮が起きて、それにより放出された潜熱は内部熱交換により回収部に伝わり、塔内を流下する還流液の蒸発に使われるのでリボイラの必要蒸気発生量すなわち加熱負荷が大きく節減される仕組みになっている。濃縮部での凝縮により塔頂コンデンサの冷却負荷も当然軽減される。

## 2.2 プロセス工学と伝熱工学の連携

最初、第一期プロジェクトのメンバーは Mahら<sup>[8]</sup>の論文の可能性に気づいたプロセスシステム工学研究者・技術者が主体となり、プラントメーカーとユーザーの石油化学会社がグループを組んでスタートしていた。当時の蒸留工学の教育・研究は、気液平衡論の熱力学と理想段(平衡段)モデルに基づくプロセスシステム工学が中心になってなされていたが、蒸留プロセス自体、熱と物質の同時移動で進行する現象であり、内部熱交換式蒸留プロセスではなおさら移動速度論的な伝熱工学が重要な役割を果たすことが予想され、伝熱工学系の研究者も第二期プロジェクトから参加することになった。その結果、技術開発の目標が具体的になり、内部熱交換の伝熱学的アプローチによる熱的設計のデータベースの構築を中心に技術開発プロジェクトは推進されることとなった。すなわち蒸留塔の濃縮部を加圧して沸点を回収部より高くして、濃縮部と回収部を熱的接触させれば、回収部の還流液の再蒸発による蒸気発生により、リボイラの加熱負荷が軽減されて、大きな省エネ効果が期待されるので、濃縮部-回収部間の内部熱交換による総括伝熱係数と伝熱面積の積 UA (一種の総括伝熱容量係数) が重要な制御パラメータとなり、実機を想定し

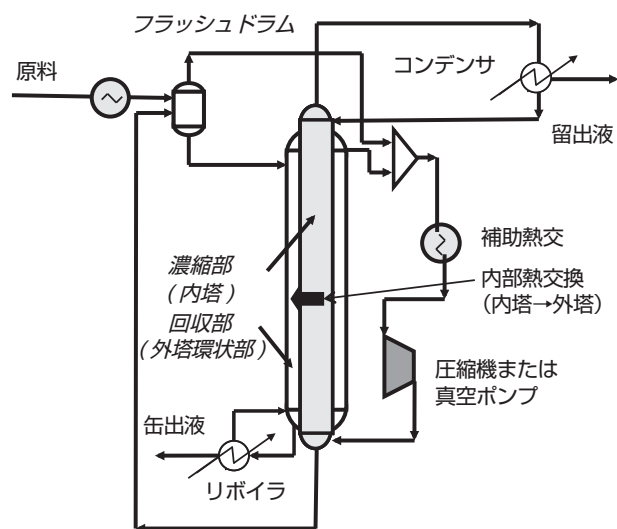


図1 標準型HIDiC (二重管式)

た実験装置による、このデータの集積が一つの重要課題となった。

UAのデータベースを基盤に内部熱交換を伴う蒸留プロセスのシミュレーションをすることにより、実機スケールでのHIDiCの適用性解析ができるようになり、いろいろな系に対する実用化の可能性が検討されるようになった。前述のように、これらの結果を基にC5-splitterの第1塔に代る充填式HIDiCパイロットプラントが建設され、第二期プロジェクトを成功することができた<sup>[2][3]</sup>。

## 2.3 普及目的の新しいシステムの考案 -第三期プロジェクト-

第二期プロジェクトにおいて、シクロペンタンをキーコンポーネントとする実際の混合ガソリンを使っての連続運転1000時間により省エネ率が60%を超える大成功を収めたHIDiCパイロットプラントは圧縮機を用いた標準型HIDiCであり、クリーン系の蒸留プロセスに適用したため、これに続くその後の実用化が進まなかった。

このHIDiC技術がなかなか普及しない原因を考えると、圧縮機を防爆にしなければならずかなり高価になり、トータルの設備費が明確でないこと、現実には圧縮機を適用しにくい汚れ系や可燃性の蒸気の蒸留プロセスも多いことがわかった。いろいろと検討の結果、「圧縮機を必要としないHIDiC (Compressor-free HIDiC、略してCF-HIDiCと呼ぶ)」を当社で考案し、新しく第三期プロジェクトを立ち上げ、技術開発することにした。その形式<sup>[4][5]</sup>を図2に示す。

このシステムは本来のHIDiC塔の前にHIDiC塔の濃縮部へ圧縮機なしで加圧蒸気を供給するための通常塔(前置蒸留塔)を設けた2塔形式である。この塔の塔頂にはコ

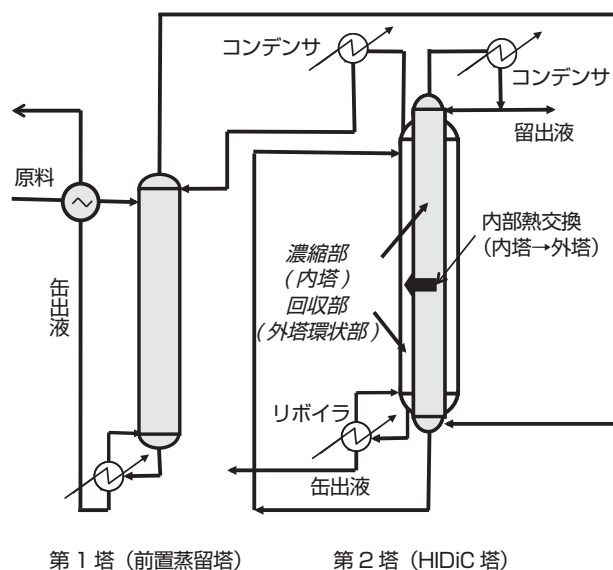


図2 圧縮機を必要としないHIDiC<sup>[4][5]</sup>  
(Compressor-free HIDiC、略してCF-HIDiCと呼ぶ)

ンデンサがなく、第2塔のHIDiC塔の回収部の塔頂にコンデンサを有しており、その凝縮液を第1塔へ還流する点が独創的な特徴である。HIDiC塔の回収部では内部熱交換により還流液を蒸発させているにもかかわらず、その蒸気をわざわざ回収部塔頂にコンデンサを設けて凝縮させることはHIDiCの基本概念に反するマイナスのアイデアであるとの異論が最初あったが、この回収部のコンデンサを第1塔のコンデンサと見なして、凝縮液を第1塔へ還流すれば、第1塔はHIDiC塔濃縮部塔底へ圧力の高い蒸気を供給する通常塔となり、何もマイナス効果とならないことがわかった。この新しいHIDiCは第1塔に特別な省エネ機能を有していないため、標準型HIDiCより省エネ率はどうしても落ちるが、既存設備の消費エネルギーの30%以上の省エネは十分に可能であり、圧縮機を必要としない利点は大変有利なため、将来の大型HIDiCの普及の道が拓けるとの観点から、前述のように、当社独自で新規に立ち上げた第三期プロジェクト<sup>[5]</sup>において、その基盤技術の開発に努めた。

この発想は前述のように、回収部塔頂にわざわざコンデンサを設けるHIDiCの常識を破るというものであったが、何のクレームもつかずに特許<sup>[4]</sup>も成立した。第2塔であるHIDiC塔の内部熱交換特性は標準型と同じで、兼用のデータベースを構築することができた。CF-HIDiCは標準型より省エネ率は少し落ちるが、圧縮機が不要であり、十分に省エネ効果が期待できるフローシステムとして高い評価を受けた。

## 2.4 貢献すべき実用化の道を模索 — 第四期プロジェクト —

CF-HIDiCについても普及を目的にいろいろと啓蒙活動もしてきたが、なかなか実用化の道は拓かれないので、先ずは商業目的でない他分野のプロジェクト研究への貢献を目指すこととなり、第四期プロジェクトとして、NEDOプロジェクトNo. P07015「セルロースエタノールの高効率製造のための統合型バイオプロセスの技術開発」に参画することになった。このプロジェクトはソフトバイオマスのセルロースからバイオエタノールを高効率で製造できるバイオプロセスの技術開発が目的であった。しかし無水エタノール1L当たりの製造コスト40円という目標が設定されており、いかに製造プロセスのコストダウンをするかが、最大の課題であった。酵母・酵素のコスト削減とバイオプロセスの高効率化と省エネ化のために酵母に糖化酵素と発酵酵素を表層提示する技術が最重要な中心課題であった。しかし発酵モロミ液を濃縮して純エタノールを得る方法の第1候補として蒸留技術が挙げられていたが、これも非常に消費エネルギーが大きいことが問題視され、大きなコストダウン

をするためには今までにない蒸留プロセスの抜本的な省エネルギー技術の開発が必須となっていた。カーボンニュートラルとなるバイオエタノールプロセスを当社のHIDiC技術による実機開発で大きく省エネ化することは重要な社会貢献になると考えて参加した。

## 2.5 新しいプロセスへの応用に挑戦 — 難題こそ真のニーズ —

ソフトバイオマスのセルロースからエタノールへの発酵プロセスで製造される発酵モロミ液は発酵残渣や多糖類、酵素、リグニン等々が含有されており、蒸留前に濾過を行っても不揮発成分や固化しそうな汚れ成分がかなり残存する。これらの不揮発物はHIDiCおよびリボイラの伝熱面へ粘着・析出・固化して大きな伝熱障害をきたす恐れがあった。まだベンチプラントも具体化していない時点で実機に近い条件でのファウリングテストをすることはかなり難問であった。これをブレイクスルーするには二重管型のHIDiC蒸留塔を模擬した装置でテストするしかなく、結局、後述の図9のように、当社オリジナルのウォールウェッター蒸発釜が最適なことに気づいた。不揮発性の汚れ成分は濃縮部へは侵入せず回収部を流下するのみであるから、ウォールウェッター釜内壁をファウリングが起きる内部熱交換の回収部伝熱壁と考え、釜のジャケット側を濃縮部伝熱面と想定すれば、回収部の操作圧力にしたがって沸点も変化できるので、後述の図9のような最適なファウリングテストが行えた。

## 2.6 省エネ目標と発酵目標の利害の不一致 — 目標の見直し —

バイオプロセスチームによるソフトバイオマスのセルロースをエタノール発酵することも難題で、どうしてもモロミ液のエタノール濃度を高くすることができず、したがって蒸留による濃縮プロセスは大量の水分を蒸発せねばならず、エネルギーを無駄遣いすることが問題視された。いくらHIDiCであっても発酵モロミ液のエタノール濃度は省エネ効果を大きく左右する重要問題であった。

そこでプロジェクトのメインプロセスである糖化・発酵のグループと「どこまで発酵によるエタノール濃度の目標値を高めてもらえるか。」交渉することになった。この時点での本プロジェクトチームの開発中のCBPプロセス(統合型バイオプロセス Consolidated Bio-Processingの略)のエタノール発酵成績はせいぜい2 wt%エタノール程度が最高であったが、どの程度の発酵モロミ液のエタノール濃度が標準型HIDiC蒸留塔の省エネ目標達成に必要なかを、先ずはクリーン系のエタノール・水系について、シミュレーション解析することとした。その結果を図3に示す。

ここで横軸の原料濃度とは蒸留プロセスへ供給する原料エタノール濃度であり、発酵モロミ液におけるエタノール

ル濃度を指している。蒸留グループが省エネ目標 (標準型 HIDiC で 4 MJ/L-EtOH) を達成するためには汚れ系であるため安全を考慮して発酵グループの発酵目標値を 5 wt% EtOH まで上げてもらう必要があることをこの図を使って説明した。これが限度であることをプロジェクトチーム全体で納得・合意した上で、各グループのプロセス目標の見直しを行った。やはり前の第三期プロジェクトで構築したデータベースを活用して厳密なシミュレーション解析結果を示すことにより、理解が得られたと考えられる。

## 2.7 ベンチプラントの設計仕様の策定と実機試運転結果

その時点では塔内部構造が明確になっていず、設計法が確定的でなかったが、工業的に実機スケールの塔内蒸気流量を実現できるような大きな塔径 (外塔: 800 mm、内塔: 508 mm) の二重管式 HIDiC 実験塔 (後述の図 4) を製作して、実機スケールでの内部熱交換特性のデータベースを構築しておいたことが幸いし、それを利用することによりベンチプラントの設計仕様策定のためのシミュレーション解析が可能となった。内部熱交換の有効伝熱面積は濃縮部では蒸気が触れる凝縮のための面積であり、回収部では還流液による濡れの面積であるべきだが、実験での検証が困難であったため、工学目的から段間隔で得られる内塔側面積を 1 段当たりの伝熱面積とし、代わりに総括伝熱係数をデータベースの推奨値より低め ( $U=250 \text{ kcal/m}^2\text{h}^\circ\text{C}$ ) に設定した。ベンチプラントの設計仕様策定のために原料 (発酵モロミ) の処理量を 50 kg/h とし、原料濃度を 5 wt% にしてシミュレーションした結果が図 10 (後述) であり、これに基づいてシステム設計をすることができた。設置場所の高さ制限 (10 m 以内) のため、塔の段数不足が心配された。特に元々計画になかった CF-HIDiC の第 1 塔 (モロミ塔) の段数 (チェンジトレイ 16 段) が省エネ目標 (5 MJ/L-EtOH) 達成のためにはギリギリの

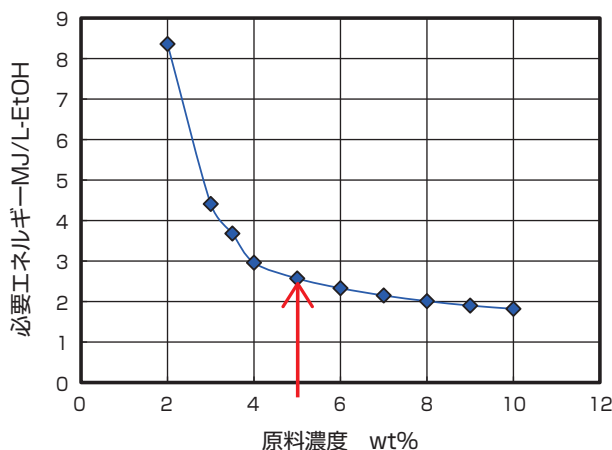


図3 モロミ液濃度による標準型HIDiCの必要エネルギーの変化<sup>6)</sup>

段数であったが、後述の図 16 のようにプロジェクトの省エネ目標を何とか達成できた。

## 2.8 ベンチプラントの試運転 —方法と結果—

運転の立ち上げ方法も議論し、模索の結果、以下のようになった。標準型 HIDiC の運転 (後述の図 12) は (1) 先ずドライ真空ポンプで回収部の空気を排気し、濃縮部コンデンサ側から大気中に排出する。(2) その後半より回収部塔底に生水蒸気を少しずつ供給し、回収部 (減圧)、濃縮部 (常圧) とともに水蒸気のみが占める状態にする。(3) 原料供給を始め、ドライ真空ポンプで望む圧縮比領域で全還流運転をした後、省エネのために生水蒸気吹込み量を減らしながら、濃縮部塔頂温度が共沸点近くで一定になるのを確認する。(4) 既定の留出流量になるように還流比を調節して定常状態にする。よい省エネ状態にすると生の水蒸気吹込み量はゼロとなった。

一方、CF-HIDiC の運転 (後述の図 14) はドライ真空ポンプを使わないので、先ずモロミ塔の塔底より生水蒸気を吹込み、モロミ塔塔頂排出蒸気は HIDiC 塔濃縮部塔底へ入り、その塔頂のコンデンサ部より大気へ非凝縮性ガス (空気) を追い出し、排出する。濃縮部塔底からの排出液は回収部塔頂に供給される。回収部塔頂へ上昇してくる蒸気はコンデンサで凝縮させる。そのコンデンサ下部に設けた水封式真空ポンプにより非凝縮性ガス (空気) を排気しながら回収部の操作圧を下げて内部熱交換状態へと持っていく。回収部塔頂コンデンサの凝縮液はモロミ塔の塔頂へ還流する。ここまでは HIDiC 塔の回収部塔底に生水蒸気を吹き込むが、その量を省エネのために節減し、最終的にはゼロになるようにする。この条件で安定してくれば、所定の原料をモロミ塔の原料供給段へ供給し、各部の流量、温度が定常状態に至るのを待つ。両フローシステムのスタートアップ運転を比較するとドライ真空ポンプを要しない CF-HIDiC の方がかなり楽であった。

## 2.9 省エネルギーの目標達成のキーポイント

ボイラーの加熱負荷の代わりにする生水蒸気吹込み量の節減が省エネ目標となる。内部熱交換中の HIDiC 塔に関しては水蒸気吹込み量は大きく節減できるはずで、標準型 HIDiC の試運転ではゼロとなった。すなわち消費エネルギーはドライ真空ポンプの消費電力が支配するだけであった。一方、このドライ真空ポンプを使わない CF-HIDiC の場合はモロミ塔のリボイラーの代わりにする生水蒸気の吹込み量が決定因子であった。回収部塔頂に設けた水封式真空ポンプの消費電力は 1/100 程度で無視小であり、かつ HIDiC 塔回収部の生水蒸気の吹込み量も容易にゼロにできたが、モロミ塔の吹込み水蒸気量を減らすと塔底の缶出液のエタノール濃度が徐々に上昇して排出基準 (<

0.1 wt% EtOH) を超えて満足しなくなる。CF-HIDiC の試運転ではモロミ塔の生水蒸気吹込み量を 10.55 kg/h にした時、缶出液排出基準を満足し、省エネ目標値 (5 MJ/L-EtOH) をもおおよそ満足する結果となった。設置場所の高さ制限がなくてモロミ塔の段数をもう少し増やすことができれば、この問題は軽減されることもわかった。

### 3 第二期プロジェクトにおける技術開発と設計データベースの構築

第二期プロジェクト<sup>[1][2]</sup>において、当社は棚段式 HIDiC に関する塔構造の技術開発を担当し、その後の自社の先導研究 (第三期プロジェクト) へ継続して実機を念頭においた内部熱交換特性の設計データベースの構築のための研究を推進した。その実験装置を図 4 に示す。この二重管式 HIDiC 実験塔は前述の C5-splitter のパイロットプラントの原料処理能力 (約 1.6 ton/h) と同じ条件で空塔基準 F-factor を調節して塔径を決めて設計されている。加圧する濃縮部を内塔、回収部を外塔側環状部とし、それぞれに当社オリジナルの“リフトトレイ”を各 4 段搭載している。塔径は内塔 508 mm、外塔 800 mm、段間隔 400 mm とした。

リフトトレイは図 5 に示すように、2 枚の多孔板を重ねたものであり、上側の可動板が蒸気速度の変動に応じて上下に浮動することにより開孔率を変化でき、自律的に圧損を制御できる HIDiC 向けのトレイである。すなわち蒸気流速が増加するとトレイの圧損が増加しようとするので、上側の可動板が浮上して開孔率を増加させて圧損が増えないように自動的に調節してくれるので、フラッディングに至るまでの安定なバブリング領域が広いという利点がある。

(内部熱交換の伝熱特性の考え方)

棚段式 HIDiC 塔内の内部熱交換の状態を模式的に図

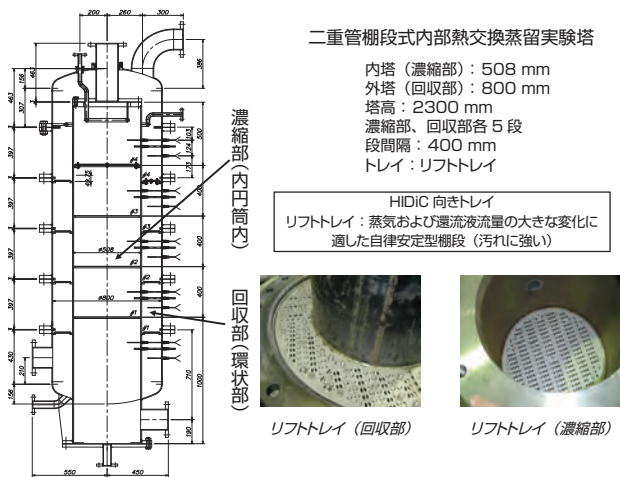


図4 二重管型棚段式HIDiC実験装置<sup>[2][5][9]</sup>

にすると図 6 のようになる。回収部より沸点が高くなるように圧縮された濃縮部では蒸気の部分凝縮が起き、その潜熱を内部熱交換でもらった回収部では還流液の部分蒸発が起きる。

この内部熱交換の総括伝熱係数の定義を次式に示す。

$$U = \frac{Q_i}{A_i \Delta T_i}$$

各段での内部熱交換の伝熱速度  $Q_i$  は濃縮部の部分凝縮と回収部の部分蒸発に支配されているが、トレイ上のバブリングの変動が複雑で、厳密に濃縮部の蒸気や回収部の還流液が伝熱面に接触する面積を測定して有効伝熱面積として評価することは非常に難しく、応用面を考えると工学的にもあまり得策でないので、段間隔で決まる内塔の側面積を伝熱面積  $A_i$  と設定した。熱的接触をしている各段での濃縮部と回収部の温度差を  $\Delta T_i = T_{r_i} - T_{s_i}$  とする。したがって段間隔や泡沫層高さが実機に近い状態で実験データを収集すべきことを配慮して実験をした。操作変数としては濃縮部圧力と回収部圧力の比  $P_{air} / P_{ais}$  すなわち圧縮比を

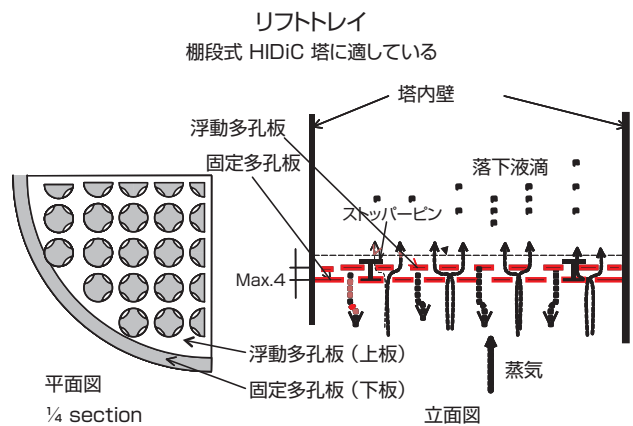
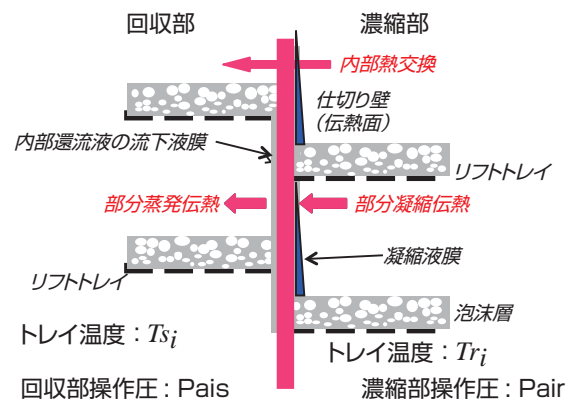


図5 リフトトレイ原理図



総括伝熱係数の定義  $Q_i = U A_i (T_{r_i} - T_{s_i})$

図6 棚段式HIDiC塔内の内部熱交換<sup>[2]</sup>

用いた。

本実験装置を使用して、プロジェクトの前半では石油系を念頭に理想系のベンゼン・トルエン系の実験を行ったが、後半にはバイオ系の新エネルギープロセスへの応用展開を意識して、非理想系としてのエタノール・水系溶液を使用して内部熱交換特性の設計データベースを構築した<sup>[5][9][10]</sup>。

後述のように圧縮比を変数とした総括伝熱係数のデータの実験誤差とばらつきを勘案すれば、その汎用性は理想系の場合にはあまり分子量が大きくない類似の炭化水素系に、非理想系の場合には水を含むあまり分子量の大きくない類似の有機系水溶液(メタノール、プロパノール、アセトアルデヒド、MEK等)に、物性(主として粘度、熱伝導度)の違いを念頭に入れて補正すれば適用できると考えている。

HIDiCの操作方法として(1)濃縮部を加圧する加圧操作 pressurizing mode( $P_{air} > 1 \text{ atm}$ ,  $P_{ais} = 1 \text{ atm}$ )と(2)回収部を減圧にする減圧操作 depressurizing mode( $P_{air} = 1 \text{ atm}$ ,  $P_{ais} < 1 \text{ atm}$ )の2種類について実験した。いずれにせよ、HIDiCの主制御パラメータは濃縮部と回収部の圧力比(圧縮比)  $P_{air}/P_{ais}$  である。得られたデータベースは標準型だけでなく、圧縮機不要のHIDiC塔(第2塔)にも適用できる。一例としてエタノール・水系の内部熱交換の実験データを図7、8に示す<sup>[5]</sup>。溶液の沸点は圧力とともに上昇するので、温度差は圧縮比とともに直線的に増加するが、加圧操作と減圧操作では相関線の勾配は異なっていて、ひとつの相関線にまとめることはできなかった。

総括伝熱係数も加圧操作と減圧操作で、その変化は同じでないが、ファウリングの起きないクリーン系であれば安全サイドの設計データベースとして  $U = 500 \text{ kcal/m}^2 \text{ hr}^\circ\text{C} = 581.5 \text{ W/m}^2\text{K}$  を推奨値と考えてよいことを確認した。

連続する2件のプロジェクト(第二期、第三期)により多くの内部熱交換を伴う蒸留実験のデータを収集して設計用のデータベースを構築できた<sup>[5]</sup>。

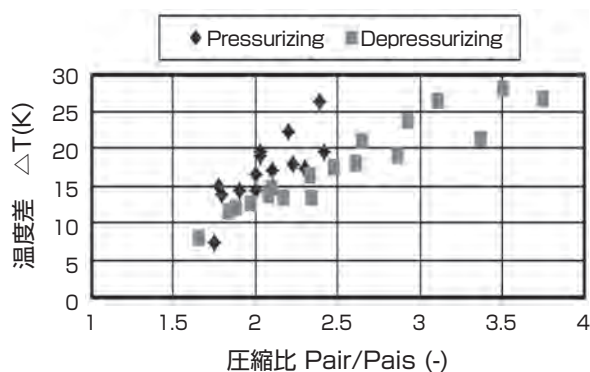


図7 温度差の圧縮比による変化(エタノール・水系)<sup>[5]</sup>

#### 4 バイオエタノールの濃縮プロセス – 第四期プロジェクト研究開発–

前述のように、十分な省エネ効果が確認されたにもかかわらず HIDiC 技術が石油化学産業へなかなか導入されず、普及しない現状打破のために、化石資源から原料転換して、カーボンニュートラルな新エネルギーの一つであるバイオエタノールを製造するプロセスの省エネ化に貢献すべく、第四期プロジェクトとして、NEDO のバイオエタノールの環境調和型統合プロセス (Consolidated Bio-Processing, 略して CBP プロセス) のプロジェクト (通常 BFC (Biofuel Challenge) プロジェクトと呼んでいる)<sup>[6]</sup> に参画した。

当社に課せられた濃縮プロセスの目標は(1)エタノール濃度が5 wt%の発酵モロミ液を脱水して、共沸点近くの90 wt%まで、HIDiC技術により濃縮することおよび(2)この蒸留プロセスでの1 Lの無水エタノールを生産するに要する消費エネルギーを標準型 HIDiC の場合、4 MJ/L-EtOH 以内に収めることであった。ただし、後半期に入って、安全性の高い CF-HIDiC の有効性が認められ、このシステムの消費エネルギー目標値は5 MJ/L-EtOH 以内に修正された。

##### 4.1 発酵モロミ液の汚れの影響

CBP プロセスで生産される発酵モロミ液には濾過してもどうしても残留する発酵残渣(グルカン等の多糖類やリグニン)や副生成物(酢酸等)、酵素等が含まれている。担当する蒸留プロセスの熱交換部において、この糖質類の複雑な固化反応が起きて加熱面に析出、粘着して伝熱阻害を引き起こすファウリングの問題があるので、これを避けるための対策を探す予備実験をした。ソフトバイオマスの稲わらから得られた発酵モロミ液をジャケット付きの蒸発釜(自社開発のウォールウェッター釜使用)に仕込み、操作圧力(したがって沸騰蒸発温度)を変化させて蒸発濃縮におけるファウリングテストをした。

この釜内が HIDiC 塔でファウリングが問題になる回収部

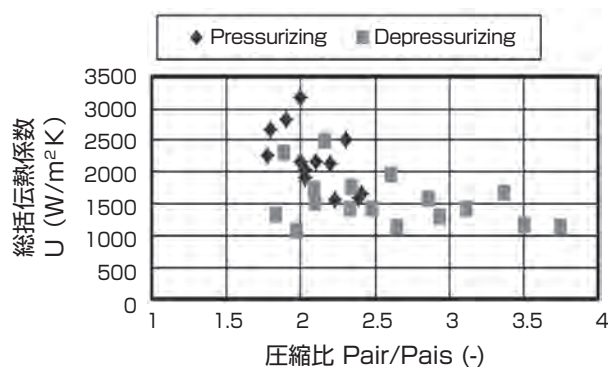


図8 総括伝熱係数の圧縮比による変化(エタノール・水系)<sup>[5]</sup>

であり、周りのジャケット側はクリーンな濃縮部を想定している。したがってジャケット側には濃縮部で予想されるあまり高くない凝縮温度を実現できる 0.12 MPa (104.5 °C) の水蒸気を用いた。

図 9 の左の釜内部の写真が示すように、沸点上昇を伴い、100 °C を少し超える常圧では溶解物質 (主としてグルカンと思われる) の固化反応が釜内壁に起き、固化物質が焦げついたように析出して大きな伝熱障害が起きた。しかし右の写真のように減圧 235 mm Hg (したがって沸点 68.2 °C) 以下にすると固化反応が起きず、釜内壁 (加熱面) に固体膜は形成されなかった。もし HIDiC 塔の塔底にリボイラを使うならば、その加熱面でも同様のファウリング現象が起きる。

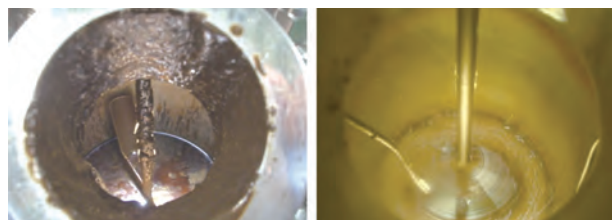
この実験により、発酵モロミ液の濃縮のための蒸留は汚れが問題となる回収部の温度を下げるために減圧にすべきこと、回収部塔底はおよそ水分のみの濃度になるからリボイラの代わりに生水蒸気を吹き込む、いわゆる水蒸気蒸留にすべきことなどがわかった<sup>[6]</sup>。

## 4.2 HIDiCベンチプラント

### 4.2.1 プロセスシミュレーション

HIDiC ベンチプラントの設計仕様を決めるためのプロセスシミュレーションをした。当初からの目標の標準型 HIDiC ベンチプラントのシミュレーションの仕様および操作条件を表 1 に示す。

使用する平衡段モデルに基づく蒸留シミュレータ (Invensys, 社製 PRO/II) には蒸留プロセス計算は理想段でよいが、内部熱交換の計算には実段が関与する条件 (総括伝熱係数、伝熱面積および段効率等) をプログラムに新規に組み込む工夫が必要であった。すなわち理想段と実際の段との関係 (段効率) が必要であった。回収部に入れる予定のリフトトレイについては第三期プロジェクトで調べた内部熱交換状態での段効率データより判断して、本プロセスでの段効率を 50 % と仮定した。したがってシミュ



760 mmHg

235 mmHg

100 °C になると固化反応が起き、その固着物質によるファウリング (伝熱障害) が起きる。

固化反応は起きず、伝熱壁には固着物は析出していない。

図9 発酵モロミ液のファウリング試験における釜内部の写真<sup>[6][10]</sup> (235 mmHgの時の沸点: 68.2 °C)

表1 シミュレーション解析の設定条件と仕様<sup>[10]</sup>

塔	二重管式
回収部 (内塔)	150 mm ID, 6.8 m
リフトトレイ	34 実段 (17 理想段)
段効率 (%)	50 (仮定)
塔頂圧力、Pais、(mmHg)	変数
1 段当りの圧損 (mmHg)	6.4 (仮定)
段間隔 (mm) (実段)	200
原料供給段 (理想段ベース)	#2
濃縮部缶出液供給段 (理想段ベース)	#1
濃縮部 (外塔環状部)	250 mm ID, 5.2 m
規則充填物	13 理想段
塔頂圧力 Pair、(mmHg)	740
1 段当りの圧損 (mmHg)	10
還流比	変数
蒸留条件	
原料供給量 (L/h)	50 (=49.35 kg/h)
初期温度、初期濃度:	30 °C、5.0 wt%
原料供給温度:	69 °C
留出液 (製品)	
エタノール濃度 (wt%)	>90
エタノール回収率 (%)	>95
缶出液 (排水)	
エタノール濃度 (wt%)	<0.1
加熱負荷 (生水蒸気吹込み)	
生水蒸気 (0.3 MPa) 吹込み速度 (kg/h)	変数
原料予熱器加熱負荷 (生水蒸気)	変数
冷却負荷 (塔頂コンデンサ)	変数
泡で凝縮 (740 mmHg)	
内部熱交換	
総括伝熱係数 U (W/m <sup>2</sup> K) x 伝熱面積 A (m <sup>2</sup> ) (1 理想段の段間隔当り) = UA (W/K)	54.82
内部熱交換段数 (回収部実段ベース)	25 (#3~#27)
熱損失	0 (仮定)
ドライ真空ポンプ	
理論消費電力 (kW)	変数

レーションでは 1 理論段の伝熱面積をリフトトレイの 2 段分が占める内塔の側面積とした。

当初からベンチプラントに計画していた標準型 HIDiC に関して、濃縮部、回収部それぞれの段数を変化させた事前のシミュレーションをして試行錯誤により濃縮条件を満足するベンチプラントとして、回収部を 17 理想段とし、濃縮部を 13 理想段に設定した。

省エネの目的からできるだけ内部熱交換の伝熱面積 (したがって塔径) を大きくする必要があり、原料 (50 kg/h, 5 wt% EtOH) を処理できる塔径として空塔基準の F-factor の範囲が  $0.05 < F < 0.7$  に収まるように内塔径  $D_i = 150$  mm を決め、外塔径を  $D_o = 250$  mm とした。F-factor が少し小さいので泡沫層高さは低く、飛沫同伴は起きにくいと考えられるので、段間隔についてはリフトトレイの実績から実段段間隔 200 mm とした。したがって理想段の段間隔が 400 mm となる 1 理想段当たりの伝熱面積は  $A_i = 0.1885$  m<sup>2</sup> となる。回収部の内部熱交換が課せられる部分は実段で #3 ~ #27 合計 25 段 (塔高さ 5 m) としたので、濃縮部側も同じ伝熱面積になるように、濃縮部 (規則充填物を入れる予定) の塔高さを合わせた。伝熱



面積を段間隔で過大に仮定していることと、実液の場合、汚れの問題が予測されることなどから安全側の設計になるように、総括伝熱係数に関してはデータベースの図8の推奨値の1/2以下に過小に評価して  $U = 250 \text{ kcal/m}^2 \text{ hr}^\circ\text{C} = 290.75 \text{ W/m}^2 \text{ K}$  と設定した。減圧操作となるから、シミュレーションの場合は濃縮部塔頂圧を740 mmHg一定にして変数である回収部塔頂圧を210 mmHgとした。その場合のシミュレーション結果を図10に示す。

リボイラの加熱負荷の代わりである0.3 MPaの生水蒸気の必要吹込み量0.88 kg/hは加熱負荷  $Q_{STM} = 2.15 \text{ MJ/h}$  に相当する。また予熱器の加熱負荷は  $Q_{preh} = 2.35 \text{ MJ/h}$  である。理論動力0.7 kWとなったが、ドライ真空ポンプの現実の効率を40%と仮定すると、消費エネルギーは  $E_{VP} = (0.7/0.40) (3600/1000) = 6.3 \text{ MJ/h}$  と換算される。原料約50 kg/h中のエタノールの体積流量は  $V_{EtOH} = 3.16 \text{ L/h}$  であるので、蒸留濃縮プロセスにおいて1 Lのエタノール生産に必要な消費エネルギーの計算結果は  $(Q_{STM} + E_{VP} + Q_{preh})/V_{EtOH} = 3.42 \text{ MJ/L-EtOH}$  となった。このシミュレーション結果をベンチプラントの設計仕様を組み込むので、計算段階でも本プロジェクトの目標値(4 MJ/L-EtOH)を十分に満足する可能性を示すことができた。

#### 4.2.2 HIDiCベンチプラントの設計と試運転結果

将来のHIDiCシステムの大型化などの可能性に鑑み、当社が製作・建設すべきベンチプラントのフローは図11のように、ドライ真空ポンプを搭載する標準型HIDiCと圧

縮機(この場合、ドライ真空ポンプ)が不要の大型プラント向けのCF-HIDiCの2種類のフローの可能性を調べる実験ができるように配慮して設計された。

##### (1) 標準型HIDiC

図11のベンチプラントを標準型HIDiCとして使用する場合のフローを図12に示す。当初のBFCプロジェクトの省エネ目標が蒸留部門で4 MJ/L-EtOHと非常に厳しかったので、省エネ効果が大きい標準型HIDiCを適用すべきと考えた。

通常のHIDiC塔と異なり、この二重管式HIDiC塔は汚れが蓄積した回収部をメンテナンスのためにトレイの引き出しをしたり、掃除がし易いように塔断面が円形の内塔側とし、掃除が必要でないクリーン系の濃縮部を外塔側環状部とした。汚れ対策も兼ねて回収部には閉塞しにくいリフトトレイを、クリーンな濃縮部には規則充填物を入れた。CBPプロジェクトで、HIDiCベンチプラントの試運転時には必要な量の発酵モロミ液が得られる段階になかったので、模擬液を用意し、濃縮部塔頂圧を常圧で一定にし、減圧にする回収部塔頂圧を変数にして試運転した結果、濃縮部760 mmHg、回収部225 mmHgにおいて良好な結果を得たので、その結果を図13に示す。

ベンチプラントは蒸留濃縮に関して以下のプロジェクト目標を十分に小さい還流比0.378で満足する結果を得た：

- (1) 90 wt%EtOHを上回る製品濃度94.4 wt%、(2) 95%を上回る原料中のエタノールの回収率95.4%、(3)

#### 消費エネルギー目標値：4 MJ/L-EtOH

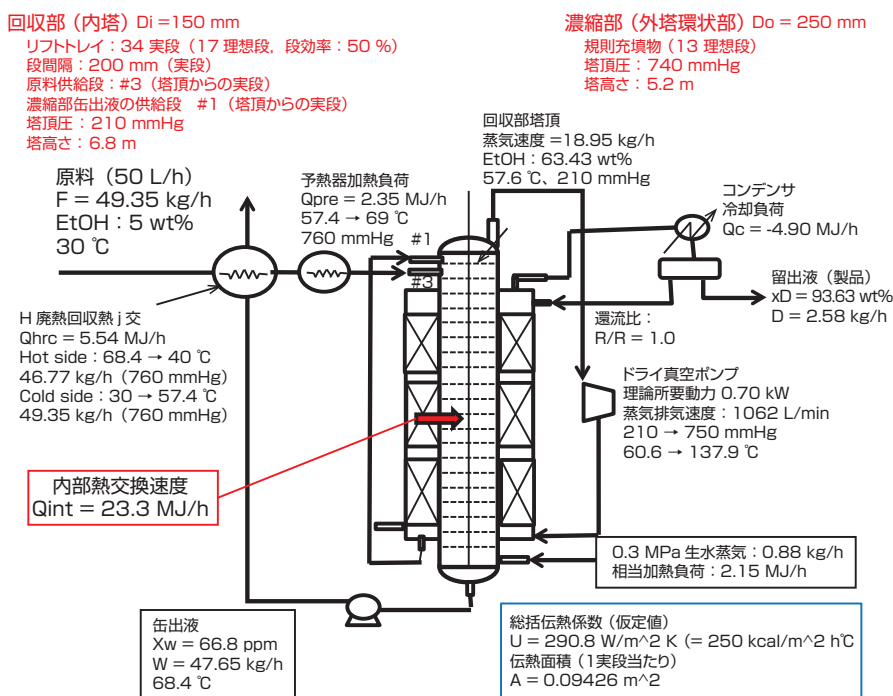


図10 設計のためのシミュレーション結果<sup>6)</sup>

0.1 wt% EtOH より十分に低い缶出液濃度 0.024 wt%。消費エネルギーに関しては、回収部塔底での生水蒸気の必要吹込み量は 0 kg/h、したがって  $Q_{STM} = 0$  MJ/h となり、この蒸留塔はドライ真空ポンプのみで運転ができ、加熱負荷なしで蒸留濃縮ができたことを意味する。このドライ真空ポンプに関しては実際に測定した消費電力が  $E_{VP} = 0.516$  kW = 1.86 MJ/h となった。予熱器の加熱負荷は  $Q_{preh} = 7.37$  MJ/h となった。消費エネルギーの合計は  $Q_{total} = Q_{STM} + E_{VP} + Q_{preh} = 9.23$  MJ/h となるので、1 L-EtOH 当たりの消費エネルギーとして  $Q_{total} / V_{EtOH} = 9.23/3.16 = 2.87$  MJ/L-EtOH が得られ、プロジェクトの

目標値 (4 MJ/L-EtOH 以下) を十分に満足する良好なる結果が得られた。

(2) 圧縮機を必要としない CF-HIDiC

プロジェクトの後半期になって、将来のプラントのスケールアップに関して圧縮機を必要としない HIDiC の利便性が注目され、追加することになった CF-HIDiC のフローを図 14 に示す。ドライ真空ポンプの代わりに HIDiC 塔濃縮部へ加圧蒸気を供給する通常塔のモロミ塔を第 1 塔 (前置蒸留塔) として付設した 2 塔システムであり、図 11 のベンチプラントの中に組み込まれている。

発酵モロミ液を原料として供給する第 1 塔には、汚れに

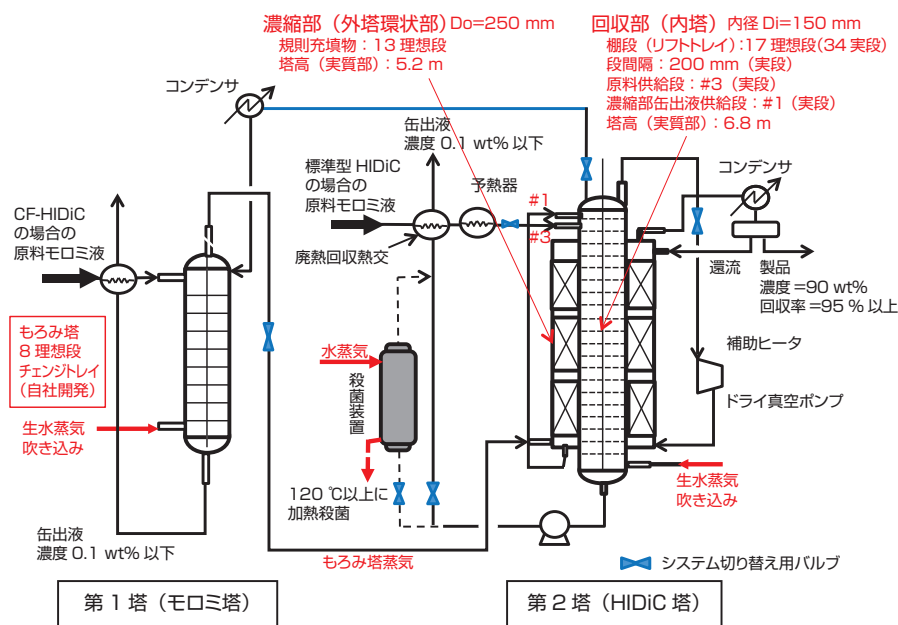


図11 HIDiCベンチプラントのフローシステム<sup>[6]</sup>

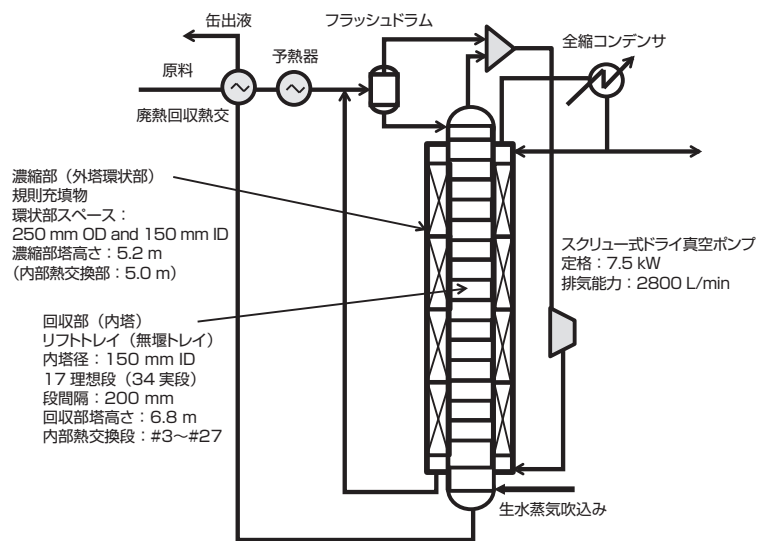


図12 標準型HIDiCベンチプラントの構造<sup>[6][7][10]</sup>

強いトレイとして塔外から自由に開閉ができる自社開発のチェンジトレイ 16 段 (8 理想段) を搭載した。このリフトトレイ型チェンジトレイは可動板と固定板でセットになったリフトトレイを中央円盤部分と周囲環状部分の 2 パートにカットして、中央円盤部を塔外部から上下に開閉可能にしたものである。(後述の図 18 左)。第 2 塔である HIDiC 塔は標準型 HIDiC と兼用することにした。

モロミ塔塔頂圧および濃縮部塔頂圧を 760 mmHg 一定にして、回収部塔頂コンデンサに付設した水封式真空ポンプにより回収部塔頂圧を徐々に低下させていき、345.5 mmHg にした場合の試運転結果を図 15 に示す。

CF-HIDiC システムの場合、モロミ塔の缶出液の廃熱が利用できるので原料予熱の加熱負荷も必要としていない。

この時の第 1 塔のモロミ塔の塔底への 0.4 MPa 生水蒸気の吹込み量は 7.0 kg/h であり、加熱負荷にすると  $Q_{STM1} = 14.95 \text{ MJ/h}$  になる。

第 2 塔の HIDiC 塔の回収部塔底への生水蒸気の吹込みは必要なかったため、HIDiC 塔自身の加熱負荷は  $Q_{STM2} = 0 \text{ MJ/h}$  となった。内部熱交換が十分であったため HIDiC 塔自身には外部からの加熱負荷が必要なかった訳で、本システム全体の総加熱負荷はモロミ塔への生水蒸気によるもののみであった。また、回収部塔頂コンデンサの下に付設している水封式真空ポンプ (定格 0.75 kW、排気量 300 L/min) の実際の排気量は十分に小さいから、これの実際の消費電力 (< 0.5 MJ/h) は消費エネルギー計算では無視できる。すなわち全消費エネルギーは  $Q_{total}$

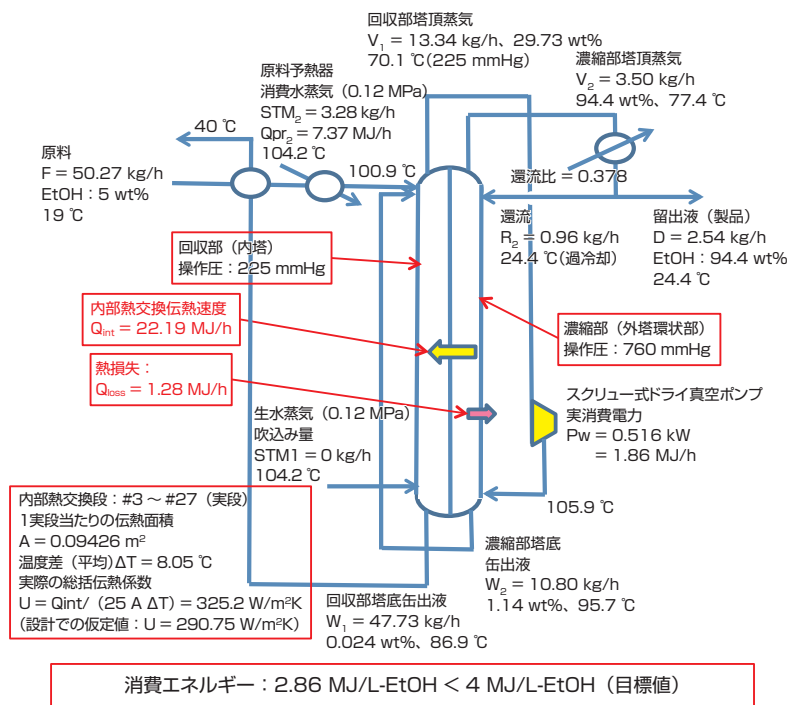


図13 標準型HIDiCの試運転結果<sup>[6][7][10]</sup>  
 (濃縮部塔頂圧: 760 mm Hg、回収部塔頂圧: 225 mm Hg)

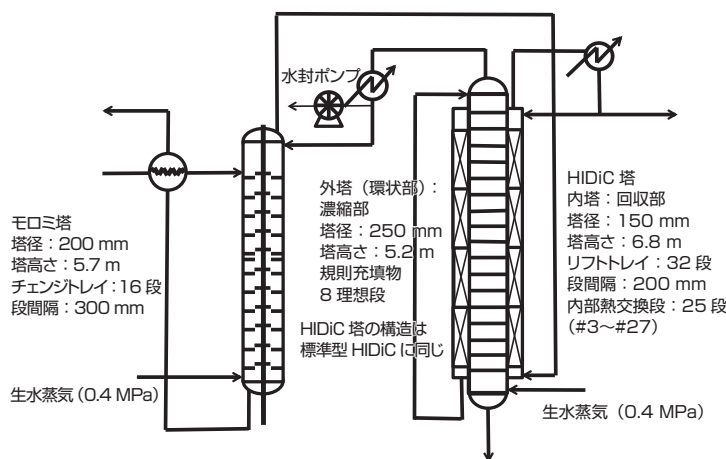


図14 CF-HIDiCのフローシステム<sup>[6][7]</sup>

$= Q_{STM1} = 14.95$  MJ/h となった。原料中のエタノールの体積流量は前述と同じ  $V_{EtOH} = 3.26$  L/h であるので、1 Lのエタノール生産に要する消費エネルギーは  $Q_{total} / V_{EtOH} = 4.59$  MJ/L-EtOH となった。本プロジェクトのCF-HIDiCの省エネ目標値は5 MJ/L-EtOHであったので、その目標だけは達成できた。

ただし、CF-HIDiCは標準型HIDiCに比して省エネ率が少し低いため、本プロジェクトの当初の検討対象に入っていなかったこともあり、かつ設置場所の高さ制限でモロミ塔の段数が少し足りず、省エネ目標を達成するためにモ

ロミ塔の生水蒸気吹込み量を減少させると缶出液濃度が徐々に上昇して排出基準 (< 0.1 wt%) を超え、0.25 wt% EtOH となってしまった。HIDiC塔の留出液濃度も目標値 90 wt% EtOH を僅かではあるが、下回って 89.04 wt% EtOH にとどまっている。

すでにモロミ塔の段数を増やせない状態なので、上記の未達分を解消する方法は生水蒸気の吹込み量を増加する側に制御することであった。そこで省エネ効果は少し減少するが、生水蒸気吹込み量を少し増加して 10.55 kg/h にすることにより省エネ目標 (5 MJ/L-EtOH) に近い条件に

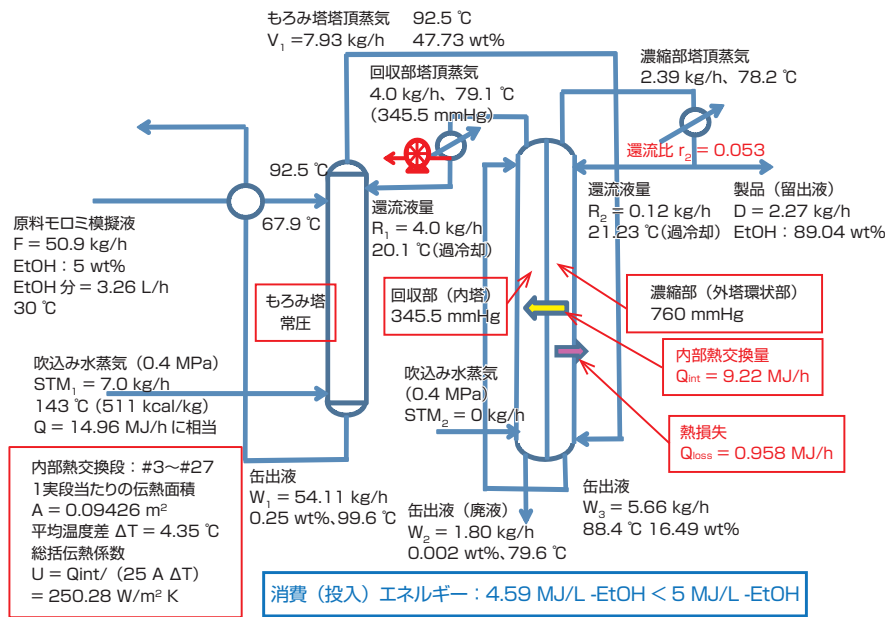


図15 CF-HIDiCの試運転結果<sup>6)17)</sup>  
(生水蒸気吹込み量7.0 kg/hの場合)

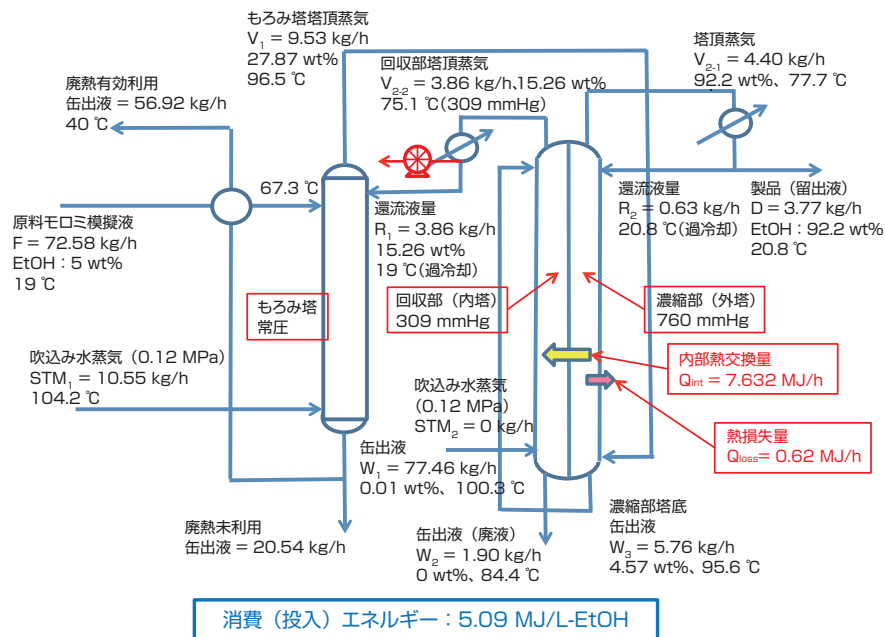


図16 CF-HIDiCの試運転結果<sup>2)6)</sup>  
(生水蒸気吹込み量10.55 kg/hの場合)

して、その制御法の妥当性を確認した結果を図 16 に示す。

図のように、プロジェクトの省エネ目標値 (5 MJ/L-EtOH) をおよそ満足する 5.09 MJ/L-EtOH になっただけでなく、製品 (留出液) 濃度の目標値 (90 wt% 以上) を十分に満足する 92.2 wt% がエタノール回収率 95.8 % で得られたこと、およびモロミ塔および HIDiC 塔の缶出液濃度の目標値 (0.1 wt% 以下) を十分に満足する 0.01 wt%、および 0 wt% が得られたことから、本 CF-HIDiC も十分によい性能が得られることがわかった。

最後に、受け渡し時のベンチプラントの写真を図 17 に示す。

右のカラムが第 1 塔 (モロミ塔) で左のカラムが二重管式 HIDiC 塔である。両塔の内部構造すなわちモロミ塔のリフトレイ型チェンジトレイと HIDiC 塔のリフトレイおよび規則充填物の写真を図 18 に示す。HIDiC 塔のリフトレイの可動板には正方形孔が開けられており、固定板の円形孔の個数は段により蒸気流量の変化に応じて増減している。

## 5 おわりに

この研究では、ニューサンシャイン計画における「内部熱交換による省エネ蒸留技術の基礎研究」に端を発し、3 段階で NEDO プロジェクトに関わって 10 年以上にわたる技術開発の積み重ねの末、ようやく実証研究で成果を挙げることができ、実用化の道が拓けてきた。非常に高い省エネ効果が得られる技術であるにもかかわらず、実用化の道が遠かったのは蒸留塔の熱源である水蒸気の温度レベルでは省エネのニーズの本気度があまり高くないためと思われる。クリーン系の蒸留プロセスには圧縮機を搭載する省エネ効果が高い標準型 HIDiC が適している。しかし蒸留塔内の大量のプロセス蒸気を圧縮する圧縮機の大型

化にいろいろな問題が残っている。特に減圧系 HIDiC のドライ真空ポンプには大型のものではなく、その技術開発の問題は依然として残っている。結局、大型の蒸留プラントにはこの研究で開発した圧縮機を必要としない CF-HIDiC が適していると考えている。バイオエタノールに限らず広い分野での実用化を期待している。

## 謝辞

この研究は主として以下の NEDO プロジェクトに参画して、推進してきたものであり、ご支援に対して衷心より謝意を表します。

- NEDOプロジェクトNo. P02020「内部熱交換による省エネ蒸留技術開発」(2002~2006)
- NEDOプロジェクトNo. P09015「エネルギー使用合理化技術戦略的開発/圧縮機を必要としない内部熱交換式蒸留システムの基盤技術の研究開発」(2008~2010)
- NEDOプロジェクトNo. P07015「バイオマスエネルギー等高効率転換技術開発/セルロースエタノール高効率製造のための環境調和型統合プロセス開発」(2008~2013)

またこの研究の上半期の HIDiC 基盤技術のデータベースを構築する過程で、(独) 産業技術総合研究所に貴重なご指導<sup>[1]</sup>をいただいたこと、そのおかげでその後の実用化へ向けての展開ができたことを付記し、深謝申し上げます。

本プロジェクトは 2013 年 11 月 7 日に英国化学工学会 (IChemE) の国際ベストプロジェクト賞 (The Chemical Engineering Project of the Year Awards) のグランプリには届かなかったが、トップ 5 にノミネートされたことを報告して、謝意を表します。



図17 ベンチプラント外観写真<sup>[10]</sup>

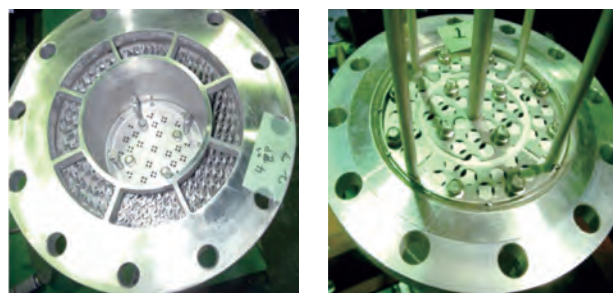


図18 HIDiC塔(左)とモロミ塔(右)の内部構造<sup>[10]</sup>  
左:リフトレイ(内塔部)、規則充填物(外塔環状部)、右:リフトレイ型チェンジトレイ

## 参考文献

- [1] 中岩 勝, 大森隆夫: 蒸留プロセスのイノベーション, 理想状態からの「デチューニング」によるプロセス強化, *Synthesiology*, 2 (1), 51-59 (2009).
- [2] (独)新エネルギー・産業技術総合開発機構省エネルギー技術開発部: 「内部熱交換による省エネ蒸留技術開発」事後評価報告書 (事業原簿) (プロジェクト番号 P02020) (2006).
- [3] K. Horiuchi, K. Yanagimoto, K. Kataoka and M. Nakaiwa: Energy-saving characteristics of heat integrated distillation column technology applied to multi-component petroleum distillation, *Distillation & Absorption 2006, Inst. Chem. Eng. Symp. Ser.*, 152, 172-180 (2006).
- [4] 特許「多成分系内部熱交換式蒸留装置」, 第4819756号 (2011).
- [5] NEDOプロジェクト No. P09015 「エネルギー使用合理化技術戦略的開発/圧縮機を必要としない内部熱交換式蒸留システムの基盤技術の研究開発」(2008 ~ 2010)成果報告書 (プロジェクト番号 P09015) (2010).
- [6] NEDOプロジェクト No. P07015 「バイオマスエネルギー等高効率転換技術開発/セルロースエタノール高効率製造のための環境調和型統合プロセス開発」(2008 ~ 2013)成果報告書 (プロジェクト番号 P07015) (2013).
- [7] 化学工学会第45回秋季大会講演要旨集 M108, M109 (2013).
- [8] R. S. H. Mah, J. J. Nicholas Jr. and R. B. Wodnik: Distillation with secondary reflux and vaporization: A comparative evaluation, *AIChE Journal*, 23 (5), 651-658 (1977).
- [9] H. Noda, K. Kataoka, H. Yamaji and N. Kuratani: Heat transfer and flow characteristics of a double-tube HIDiC trayed column, 8<sup>th</sup> World Congress of Chemical Engineering, energy 0064, (2009).
- [10] K. Kataoka, H. Noda, T. Mukaida, G. Nishimura and H. Yamaji: Boost to bioethanol distillation by internal heat-integrated distillation column (HIDiC), *Advanced Chemical Engineering Research*, to be published.

## 執筆者略歴

片岡 邦夫 (かたおか くにお)

1963年京都大学工学部化学機械学科卒業、1968年京都大学大学院工学研究科博士課程修了(化学機械学専攻)。1968年神戸大学工学部化学工学科常任講師着任、1971年助教授、1988年教授昇任。1994年神戸大学工学部長就任、1997年神戸大学副学長就任。2000年(公益社団法人)化学工学会会長就任。2001年兵庫県科学賞受賞、2003年神戸大学定年退官、2003年化学工学会賞受賞、2003年(株)関西化学機械製作入社、専務取締役、2012年同研究所長、(株)Bio-energy 専務取締役兼務。神戸大学(～2003)においては移動現象学、伝熱工学の教育研究に従事。関西化学機械製作(2003～)においては化学プロセスの伝熱を伴う単位操作の技術開発に従事。特に蒸留プロセスの省エネ化のHIDiCの技術開発(NEDOプロジェクト)に従事。2008年からは本研究のBiofuel Challenge NEDOプロジェクトのソフトバイオマスのセルロースエタノールの発酵液の蒸留・濃縮プロセスの省エネ化のためのHIDiCの技術開発に従事した。この論文では基盤技術開発の実験を担当して内部熱交換特性のデータベースの構築、これを基盤とするプロセスシミュレーション解析法の確立とプロジェクトの他チームとの情報交流と交渉をリード役として担当し、HIDiCベンチプラントの設計仕様策定のための技術計算と実機設計を担当した。



野田 秀夫 (のだ ひでお)

1970年大阪大学理学部物理学科卒業。1970年(株)関西化学機械製作入社、1975年大阪大学大学院基礎工学研究科博士課程修了(化学工学専攻)。1979-1981年連合王国リーズ大学客員研究員。1993年(株)関西化学機械製作の代表取締役社長。2001年Bio-energy(株)代表取締役社長兼務。2011年兵庫県科学賞受賞、2013年(公益社団法人)化学工学会理事。1990年から現在までHIDiC、ウォールウェッター、晶析装置、バイオ燃料等の技術開発に従事し、主として化学工学会と分離技術会において10回を超える技術賞を受賞している。本研究に関係するバイオマスからのエタノール発酵に関しては、2001年からバイオリクターの研究に従事。先導研究段階から現在に至るまで生物化学工学の研究開発実績を基にBiofuel Challenge NEDOプロジェクトのセルロースエタノール製造の工業化の目標に向かってプロジェクト研究マネージメントに従事してきた。この論文ではセルロースエタノールの製造プロセス全般の副統括として、統合プロセスの中での各サブプロセスチーム(前処理プロセスチーム及びバイオプロセスチームと蒸留濃縮プロセスチーム)をバランスよく先導し、各サブプロセスに許される消費エネルギーの配分と目標値設定を担当した。



## 査読者との議論

## 議論1 全般

コメント(長谷川 裕夫:産業技術総合研究所、景山 晃:産業技術総合研究所イノベーション推進本部)

この論文は化学産業の主要プロセスである蒸留技術に焦点を当て、内部熱交換式蒸留塔(HIDiC)という大きな省エネルギー効果を期待できる技術の普及に向けて、10年にわたる3つのNEDOプロジェクトにおける技術開発を通して、その導入の障壁となっている技術課題を分析し、戦略的に研究開発に取り組み、従来型HIDiCの問題点を克服して、圧縮機を必要としない新たなCF-HIDiCの開発につなげた一連の取り組みを述べています。明確なシナリオに基づいた研究開発の過程は、他の分野の研究者にとっても有益であり、シンセシオロジーにふさわしい論文と思われる。

この過程において、本来の目標を達成するために、広い視野角を持って異なる技術領域が相互補完的に取り組んだ具体例として、プロセスシステム工学と伝熱工学との融合や、糖化・発酵グループとの協力体制をタイムリーに提案・説得し、実行していった研究開発方法論、プロジェクトマネージメント論として大変示唆に富む論文になっていると判断します。

回答(片岡 邦夫)

シンセシオロジーの本来の目的に応じて、プロジェクトの技術開発結果よりもプロジェクトをいかに進めたか、その方法論を基幹とした章の組み替えをご提案いただきました。その趣旨に沿って、査読により頂いた質問や意見に応じて論文を修正し、完成させました。このような成果を挙げるには約10年の間に3件のNEDOプロジェクトを認めていただき、それぞれ異なった分野の専門家や経験者にいろいろな意見やアドバイスをいただいたお蔭です。他分野の研究者とも合流し、勇気をもって自分のわからない部分を提示して、それを専門分野とする人たちの意見と協力を仰ぐように体制を組み、活発な議論を重ねる雰囲気づくりが大切で、プロジェクトは総合的でないといけないと思います。

## 議論2 クリーン系と汚れ系での蒸留技術について

質問(長谷川 裕夫)

シンセシオロジーでは、その分野の専門ではない読者も容易にその内容を理解していただけるように、記述をお願いしています。以下の点について補足していただければより分かりやすくなると思われる

す。

第二期プロジェクトでは、木村化工機(株)が開発した充填塔式 HiDiC を使用されていますが、充填塔式はどのような位置づけであり、また、クリーン系とはどのようなものを指し、どの程度の省エネルギーが期待できるのですか。

一方、この論文のテーマである汚れ系とはどのようなものであって、なぜ、充填塔式では対応できないのかについて、解説をお願いいたします。

また、HiDiC につながるアイデアは Mah らによって発表されたが、それが誰にも注目されず、廃案のような状態であったのはなぜでしょうか。どこに技術的に困難な課題があって、あきらめられていたのでしょうか。

回答 (片岡 邦夫)

ご質問を考慮してこの論文に加筆・追記しました。

まず、クリーン系ですが、第一期、第二期プロジェクト当時は先行する大学等での蒸留実験でよく研究されていたのは充填塔式でありましたので、プロジェクトの研究対象は充填塔構造の HiDiC でスタートし、集積したデータも充実していました。残渣物(ピッチ等)を含まない石油化学系のハイドロカーボンで重合しそうな物質を含まない混合物は腐食も汚れもなく、固形分残渣もないため、充填物の詰まりがなく、加熱面への伝熱阻害物質の粘着・固着もないため、HiDiC パイロットプラントの候補として充填塔式が適していると判断されました。

一方、汚れ系とは、蒸留により処理すべき原料に、もともと固形分(例：溶剤中の顔料や触媒等の微粒子、炭化物粒子、灰分等)を残渣として含んでいた、モノマー溶液等蒸留プロセス中で(重合や固化反応等により)粘着性が増加したり、固形分になる成分を含んでいた、温度が上がると結晶(例えば、硫酸カルシウム)が析出する灰分を含んでいたものも指しており、対象物は多種多様です。これらの汚れ系原料では充填物は目詰まりが起きやすく、一旦目詰まりするとそれを解消する洗浄等のメンテナンスが非常に困難です。このため、新技術の開発が必要となりました。

Mah らの論文が廃案状態であった原因を詳しく分析したわけではありませんが、1) 蒸留工学分野の人にとってはこの論文は目に留まりにくい場での発表であったこと、2) 蒸留プロセス中の蒸気の成分を考えると、機械圧縮する大排気速度のコンプレッサをプロセス中に導入することには防爆問題等の危険性もあり違和感があったこと、3) プロセスシステム工学が専門の Mah らの論文では内部熱交換を伴う蒸留塔の構造的イメージが示されておらず、各段を単なるブラックボックスの連結のシステムとして示していただけなので、蒸留工学の研究者では実現の可能性が読み取れなかったためと、考えています。

### 議論3 技術の独創性

質問 (景山 晃)

蒸留塔第2塔のコンデンサの凝縮液を第1塔に還流することが独創的な特徴であると述べ、また、CF-HiDiC の第2塔に当社オリジナルの“リフトトレイ”を組み込んだことが述べられていますが、これまで、類似の技術が世の中に存在しなかったという意味でしょうか。技術の独創性についてもう少し詳しく論じていただけませんか。

回答 (片岡 邦夫)

この論文に追記しましたが、第2塔(HiDiC塔)の回収部では、内部熱交換により還流液を蒸発させることによりリボイラの熱負荷を軽減しようとしているつもりなのに、回収部塔頂にコンデンサを設けてわざわざ凝縮させることはこれまでの HiDiC 理論ではナンセンスな考えであり、マイナス効果であるとの異論が最初噴出しました。しかし、第1塔には塔頂コンデンサはないが、HiDiC 塔の回収部塔頂コンデンサの凝縮液を第1塔に戻せば、このコンデンサは実質的に第1塔のものであると考えられること、これにより第1塔は第2塔濃

縮部塔底へ高圧蒸気を送れる通常の蒸留塔と見なすことができるが省エネ効果はないこと、その代わりに、圧縮機がなくても第2塔が非常に大きな省エネ効果のある HiDiC 塔になり得ると考えれば、当初、異論として出された問題点を解消できることなどを主張し、それをシミュレーション解析で示すことにより、アドバイザー会議でも理解・納得してもらえました。これも大きなブレイクスルーの出来事でした。

この発想は、蒸留部門の専門家ではない伝熱工学屋でなければ出てこなかったと考えており、いわゆる発想の転換がキーポイントであったと思っています。

また、リフトトレイは開発の時点では世界初と考えています。多孔板2枚を重ねて1セットのリフトトレイは塔内蒸気流速の増加に応じて上側のトレイが浮上し、上下のトレイで孔配列をずらしてあるため開孔率が大きくなり、圧損が増加しないように働きますので、「自律的に圧損制御」できる Fluidics(流体素子)のようなユニークなトレイで、現在も活躍しています。この論文に少し加筆しました。

### 議論4 異なる技術領域の融合

質問・コメント4 (景山 晃)

この論文ではこれまでの化学工学の専門性の範囲を越えて、プロセスシステム工学と伝熱工学との融合を図った結果、総括伝熱係数と伝熱面積の積に着目してデータ集積したことが課題突破の重要な方法論となったことが述べられています。この領域融合はどのような議論の過程で出てきたのですか。既存の領域を越えることの重要性を示す具体例として補足などを示していただくことは可能ですか。

回答 (片岡 邦夫)

この論文でも触れていますが、プロセスシステム工学の専門家、実際の蒸留プラントの専門家と著者ら伝熱工学の専門家と構成するアドバイザー会議を設け、これまでのプロセスシステム工学と気液平衡論により体系化された蒸留工学では何故不十分なのか、また、その問題点の把握とブレイクスルーを期待できる伝熱工学(非平衡論)に立脚し、伝熱面の現象論を取り扱う)的なアプローチをいかに融合するかについて、両論の専門家の長い議論が行われました。これはシンセシオロジーの観点からも有益な議論であったと考えられます。

議論の結果、いかに実際に応用しやすいパラメータで簡易なデータベースを構築するかで歩み寄り、通常の蒸留塔ではなく、HiDiC そのものの特性パラメータである総括伝熱係数と温度差を圧縮比で整理する伝熱工学を基にした使いやすい蒸留システム設計論を構築することができました。

もう少し詳細に述べると、蒸留プロセスは蒸気相の高沸点成分が凝縮して放出する潜熱を液相中の揮発しやすい低沸点成分がもらって蒸発する、すなわちもともと熱と物質の同時移動で起きる現象です。この観点から、半世紀前に AIChE Research Committee がガス吸収と類似の物質移動(非平衡の移動論)の考え方で棚段塔の蒸留塔の「設計法と解析方法の構築」にチャレンジ(Tray Efficiencies in Distillation Columns, 1958, Bubble-Tray Design Manual, 1958)しています。これは当時としては画期的な素晴らしいものでしたが、現象が複雑でまとめが難しいため、その成果が応用展開されませんでした。すなわち、現在でも蒸留塔の解析と設計理論は移動論ではなく、気液平衡論と理想段モデルに立脚しているのが実態です。

内部熱交換がなされる HiDiC システムでは、平衡論と非平衡論とのかい離がさらに一段と大きくなります。これを突破するため、HiDiC においては、プロセスシステム工学的なプロセスシミュレータを使用しながらも、新たに構築した HiDiC データベースから総括伝熱係数と段効率を仮定することにより、設計手法を明確に確立できました。ベンチプラントの設計仕様は、この設計手法に基づいて策定し、有効に応用できたことが本プロジェクトを成功に導いたものと思っています。

## 議論5 発酵技術との相互補完

質問・コメント4 (景山 晃)

2.6に糖化・発酵グループとの交渉について触れてあります。図3を蒸留プロセス側から提案して糖化・発酵グループと議論するという解決策も素晴らしい発想力の現れと思います。議論の結果、プロジェクトチーム全体で納得して課題解決に進んだことを含めて、異なる技術領域の研究者が相互理解の上に共通課題の突破に邁進することは、イノベーションの引き金となる新しい技術システムを生み出す際に極めて重要と思いますので、もう少し詳しく述べて下さい。

また、糖化・発酵グループ側の研究で目標とした5 wt%に到達したかどうかは、CF-HIDiC技術と相まってプロジェクト全体の成果に係わる重要な情報となり、40円/Lという目標に対する達成度を読者に伝えるために重要な情報だと思いますので、発酵モロミ液中のエタノール濃度が何wt%まで向上したのかを簡潔に記載していただくようお願いいたします。

回答 (片岡 邦夫)

バイオプロセスチームは遺伝子操作をしたり、細胞表面提示技術を活用して、効率のよい収率の高い糖化・発酵技術を開発するべく大変な努力をしていましたが、セルロース原料ではなかなか難しく、その時点で報告されていた発酵到達濃度はせいぜい2 wt%程度でした。本プロジェクトに課せられた第一目標(製造コスト)は40円/L-EtOHでした。これを達成するために各サブプロセスに振り分けら

れた消費エネルギーの目標値の中で蒸留濃縮プロセスに与えられた目標値は、標準型HIDiCの場合4 MJ/L-EtOH、この論文のCF-HIDiCの場合5 MJ/L-EtOHでしたが、その時点で一番省エネ効果の高い蒸留技術であるHIDiCでも汚れによるファウリングの問題もあり、発酵モロミ液のエタノール濃度が5 wt%に届かないと目標を達成できない、すなわちこのプロジェクトは目標未達となるとプロジェクト委員会で主張しました。ご指摘のこの論文の図はシミュレーション解析結果を使って、プロジェクトが目指すべき発酵目標値を示した図です。やはりHIDiCの積み重ねたデータベースを基に厳密にプロセスシミュレーション解析した結果を用いて説明しないと全員の合意は得られなかったと考えます。このような経緯をこの論文に加筆追記しました。

一方、糖化・発酵グループは600株以上の酵母候補株からのスクリーニングにより得たCBP酵母を宿主として、キシロース代謝能の付与、発酵阻害物耐性遺伝子の導入、セルラーゼの細胞表面への安定的な提示に成功しました。その結果、高濃度バイオマス前処理物を高効率に糖化・発酵させるシステムを構築することができ、低濃度の開発酵素の存在下で5 wt%以上のエタノールを含有するモロミ液の生産が可能となりました。すなわち糖化・発酵グループも目標を達成しています。

蒸留濃縮プロセスとバイオプロセスの両チームが協力しあって、それぞれ目標をクリアしたことで、本プロジェクトは全体の目標を達成できました。