

【緒言】近年、ポリプロピレンの製造には、気相で重合反応を行なう気相重合反応プロセスが用いられる。本プロセスでは、従来の液相プロセスで必要であった生成ポリマーと溶媒との分離工程が省かれることにより大幅なコストの低減がなされる。しかし、プロセスは不安定な挙動を示すため外乱などの影響により反応器の運転を安定に行えない場合がある。安定な制御システムの設計のためには、プロセスの動特性の解析が重要となる。本研究では、気相重合反応プロセスの動的モデルを構築し、シミュレーションにより動特性の解析を行い、新しい制御システムの構築をめざした。

【本プロセスの概要】本プロセスの概略図を図1に示す。反応器内は、重合反応により生成した粉体ポリマーと気相状態のモノマーとが混在する粉体層部分と、反応器上部の気体モノマーのみが存在する空間部分より成る。粉体層部分は、ヘリカルリボン攪拌翼により攪拌が行なわれている。反応器にはモノマー（プロピレン (q_1)、不純物として含まれるプロパン (q_2)）、分子量調整剤の水素 (q_3) 及び触媒 (q_c) が供給される。本プロセスの最大の特徴は、反応器の冷却にモノマーの蒸発潜熱を利用する点である。モノマーを液化して反応器に供給し、反応器内部で蒸発する際の蒸発潜熱により反応器の冷却が行なわれる。このため、反応器内の未反応気体モノマーがリサイクルされ、コンデンサーで液化された後に再び反応器へと供給される。この液化リサイクルモノマーの供給量 q_{Rin} を操作量として、反応器温度 (T) のカスケード制御が行なわれる。また、この未反応気体モノマーの抜き出し量 q_{Rout} を操作量として、反応器圧力 (P) の制御が行われる。また、反応器からのポリマーの抜きだし量 Q_0 を操作量として、粉体層体積 (f) の制御が行なわれる。従来のプロセスでは反応器圧力 (P) の制御ループは存在しないが、反応器温度および圧力の安定化を図れる可能性があるためこれを導入した時の制御性能についてプロセスシミュレータを用いて検討を行なった。

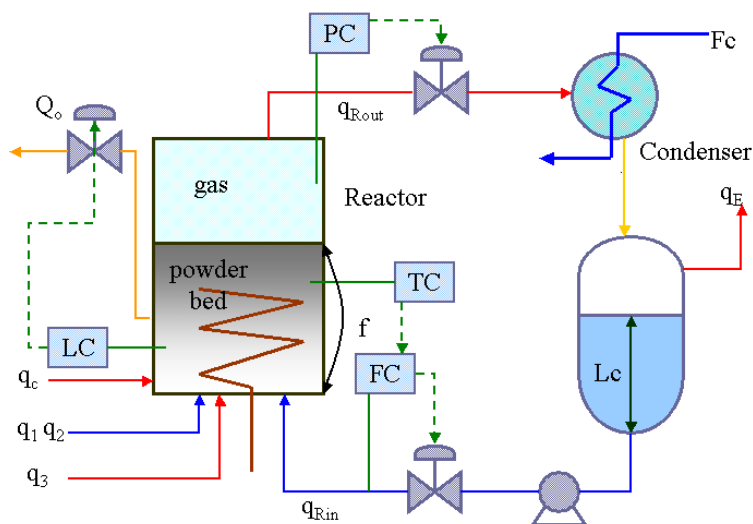


図1 攪拌型気相重合反応器プロセスフローおよび制御ループ

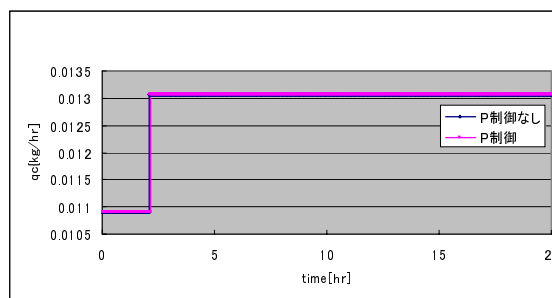
【数学モデル】反応器内部を空隙率 (ε) 一定の粉体層部と空間部から成るとし、重合反応は粉体層のみで進行すると仮定する。また、反応器内部の濃度及び温度分布は一様と仮定する。すると、反応器内の気相全体について物質収支式が導かれる。気相中のプロピレン、プロパン、水素の各成分についても同様の収支式が導出される。触媒及びポリマーについては、ポリマー中に含まれる触媒の重量分率を x_c とすると、それぞれ物質収支式が導かれる。また反応器に関するエネルギー収支式はエンタルピーを用いて導かれる。実プラントの実測データより反応器内部に液相の存在が確認されている。ここではプロピレンに関する蒸発のみを考えることにし、液相を仮定の液滴に置き換えて蒸発のモデル化を行う。

【Visual Modeler】本研究では市販のダイナミックシミュレータ Visual Modeler (VM) を用いて計算する。VM は化学プラントの装置に対応するモデルが組み込まれていて、流体や粉体を扱う設備の動的なシミュレータを作成し実行できる。またユーザーがプログラムしたモデルを組み込むことができる。本研究では、反応器モデルを C 言語でプログラムし、ユーザーユニットを作成した。他の装置や計測器は VM の標準ユニットモデルを使用している。VM はモデルの組立から、シミュレーションの実行までの操作をプロセスフロー図の画面から行うことができ、視覚的にダイナミックスの正常異常を把握できる。モデル計算の時間きざみも自由に設定できるため、長時間のシミュレーションが容易になり、また短時間のダイナミックスが十分に把握できる。

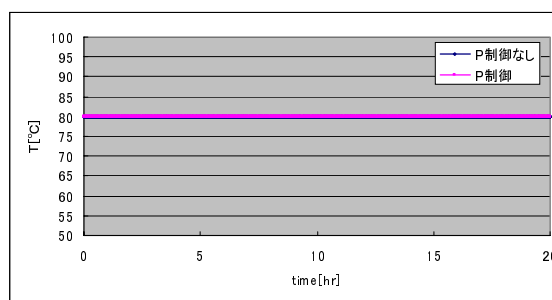
シミュレーションの途中の状態を初期状態として保存できるので、どの状態からでも何度も運転を再開できる。モデル計算に必要な物性値としては、分子量のように個々の物質成分に固有なデータと、気液平衡定数のようにそのつど計算するプログラムが準備されている。エンタルピ、密度、粘度の計算は気体と液体のみなので、本研究ではポリマーを気体として計算している。VM でのモデル構築が本研究の律速段階だった。

【制御システム】本プロセスは非常に不安定なため、外乱の影響を大きく受けやすい。また反応速度が反応器内の温度や圧力に影響をあたえている。これまでも反応器温度制御はされているが、反応器圧力は、フィードモノマー供給量や触媒供給量に敏感に反応するため制御は行われていないが、実際の運転上は反応器圧力の変動が問題となっている。そこで本研究ではリサイクルガス流量 q_{Rout} を操作量とする反応器圧力制御を試みた。

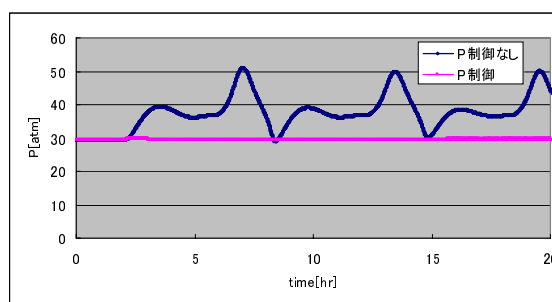
【シミュレーション結果】触媒供給量 q_c を +30 % ステップ変化させた際のモデルによる、反応器温度 (b)、反応器圧力 (c)、およびコンデンサーのリザーバーの液レベル (d) の応答の結果を図 2 に示す。反応器温度制御は反応器圧力制御の有無にかかわらず、どちらでも十分に制御できた。反応器圧力制御がない方では反応器内が非常に高圧になっている。またコンデンサーのリザーバーの液レベルが反応器圧力の変化と共に大きく変動している。一方、反応器圧力制御をしている方では十分に反応器圧力の制御ができています。またコンデンサーのリザーバーの液レベルが最小液レベルまで比例的に下がっている。この結果よりリサイクルガス流量 q_{Rout} を操作量とした反応器圧力制御の有効性がわかった。しかし液レベルが最小になるとシステムの安定性がくずれる問題が残っている。



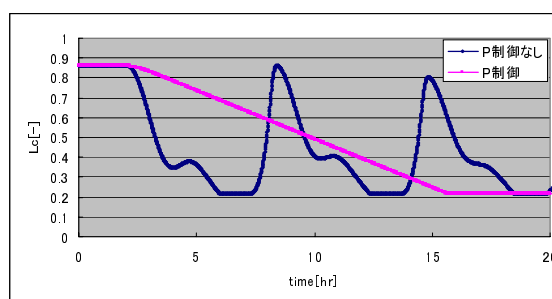
触媒供給量 (a)



反応器温度 (b)



反応器圧力 (c)



リザーバー液レベル (d)

図 2. シミュレーション結果