

# 省エネルギー化を図る最新の空気分離装置

Latest Models of Air Separation Plants with Energy Saving

喜多 修\* *Osamu Kita*  
山崎正博\* *Masahiro Yamazaki*  
染矢和夫\* *Kazuo Someya*  
藤森幹治\*\* *Kanji Fujimori*



共同酸素株式会社 鹿島工場納め30000TOプラント® パッケージ化を図り、省エネルギー、エキスパート制御方式を採用した共同酸素株式会社 鹿島工場納めの酸素発生量30,000 m<sup>3</sup>N/hのTOプラント (Tonnage Oxygen Plant : 空気分離装置) (平成3年10月稼動)の外観を示す。

最近のTOプラント® (Tonnage Oxygen Plant : 空気分離装置)の特徴として、空気中の水分、二酸化炭素を除去する前処理に、吸着技術を採用した省エネルギー形・エキスパート制御方式のTOプラントが主流となっている。これは吸着剤の性能が向上したこととともに、種々のプロセス改善が図られた結果、従来の主流であったREVEX方式(可逆熱交換器方式)に比べて電力原単位が改善され、熟練運転員を必要としない優れた制御性と、アルゴンや窒素採取量

が大幅に改善されたことによる。また液体窒素の需要の伸びに伴って、夜間電力を利用する液体窒素製造装置の需要も増加している。一方、半導体の急速な高集積度化に伴って、不純物がPPB(Parts per Billion : 10<sup>-9</sup>)レベルの超高純度窒素が要求されており、このため高活性の触媒技術、超クリーン化技術とともに、高度な分析技術が生かされた超高純度窒素製造装置が製品化されている。

\* 日立製作所 笠戸工場 \*\* 日立テクノエンジニアリング株式会社

## 1 はじめに

1960年代後半から1970年代にかけて建設された鉄鋼、化学工業向けの深冷技術を応用したTOプラント (Tonnage Oxygen Plant：空気分離装置)は、設備更新の時期を迎えている。最近のTOプラントの特徴として、空気中の不純物である水分と二酸化炭素を除去するための前処理技術として、従来のREVEX方式(可逆熱交換器方式)に代わり吸着方式の採用が主流となってきている。吸着方式には温度差を利用したTSA (Thermal Swing Adsorption)方式と圧力差を利用したPSA (Pressure Swing Adsorption)方式とがあり、設備コストの点から大形のプラントにはTSA方式が、小形のプラントにはPSA方式が適用されることが多い。

従来のREVEX方式は、原料空気中の水分と二酸化炭素を約0.6 MPaの圧力、270~100 Kの低温下でアルミプレート熱交換器の伝熱板表面に凝固させ、一定時間経過後大気圧、100 K程度の排ガスで掃気して昇華させる原理によって成り立っている。この凝固、昇華プロセスを良好に行わせるための熱交換器の温度差管理は、運転員にとって非常に複雑な作業となっている。また熱交換器本体やヘッド、配管は短時間(数分間)での流路の切り換えによる疲労を考慮して点検を頻繁に実施する必要が年々増えてきている。

これに対して吸着方式のTOプラントは、近年吸着剤の性能も向上し、さらに種々のプロセス改善を図ってきた結果、従来のREVEX方式に比べて劣っていた電力原単位が改善され、さらにエキスパート制御方式の開発に

よって運転操作の容易な信頼性の高いプラントとなっている。

また、液体窒素の需要量の伸びは年々増加しており、夜間電力を利用する液体窒素製造装置をTOプラントに併設するケースも増えている。

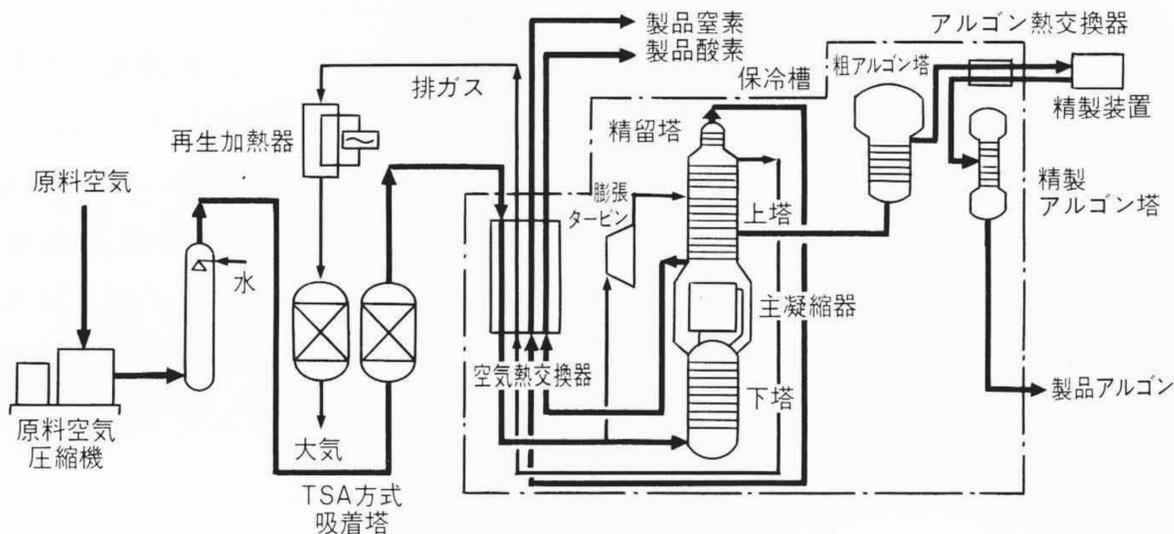
一方、窒素を製造するAPN<sup>®</sup>プラント (Automatic Pure Nitrogen Generating Plant：窒素製造装置)では、近年の半導体産業の急速な伸びに支えられて窒素の需要が伸びており、特に集積度の向上に伴い、不純物がPPB (Parts per Billion：10<sup>-9</sup>)レベルの超高純度仕様の窒素が要求されている。

以上の背景を踏まえ、最近のTOプラント、液体窒素製造装置、およびAPNプラントの技術動向について以下に説明する。

## 2 省エネルギー形・エキスパート制御方式のTOプラント

前述のように近年設備更新マーケットが多く、このため、現有プラントと新設プラントとの性能差により、コストメリットを生み出す必要性がある。また、近年の労働事情にみられるように、若年運転員の不足とベテラン運転員の老齢化が進み、ベテラン運転員を要しない制御システムやメンテナンスに手がかからないプラントが要求されている。

このような背景のもとに、ガスのコストの大半を占める電力コストの低減を目的とする「電力原単位の低減」、ベテラン運転員並みの自動運転を実現する「エキスパート制御」、現地での労働事情悪化に対応するための「パッ



注：略語説明 TSA方式 (Thermal Swing Adsorption)方式

図1 TSA方式TOプラントのフロー 前処理装置としてPSA方式を取り入れたTOプラント (Tonnage Oxygen Plant：空気分離装置)のフローを示す。

ケージ化」について以下に説明する。

### 2.1 電力原単位の低減

TOプラントの原理は、**図1**に示すように原料空気を圧縮機で約0.6 MPaに圧縮して、吸着塔で空気中の水分や二酸化炭素を除去した後、空気熱交換器を経て精留塔で窒素、酸素、アルゴンの沸点差を利用して精留分離を行うことにある。原料は空気であり、運転コストは人件費を除けばほとんど電気代ということになり、単位製品発生量に必要な電力量として定義される電力原単位(kWh/m<sup>3</sup>)の低減がきわめて重要となる。TSA方式TOプラントの所要電力の内訳を示すと、原料空気圧縮機が88%を占めており、吸着塔の再生に必要な再生加熱器の電力7%を加えると、これだけで全消費電力の95%にも達する。

以下、電力原単位低減のための最近の技術動向について説明する。

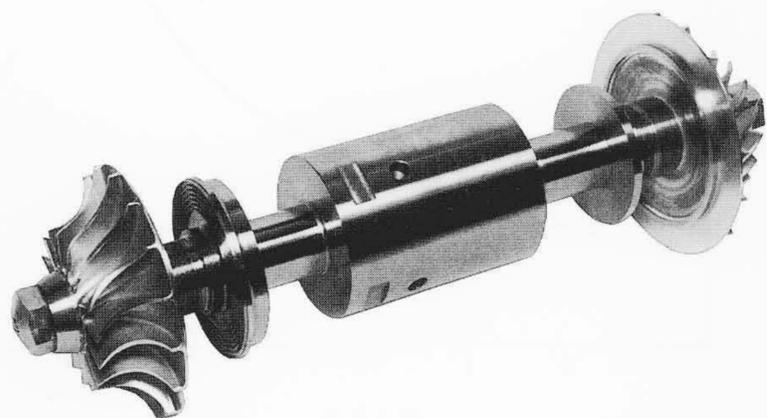
#### 2.1.1 原料空気量の低減

原料空気圧縮機の電力低減のためには、原料空気量の低減が重要である。

最近のプラントでは、寒冷発生効率の高いタービン圧縮機を採用することによって所要空気量を低減させている。また、高効率精留皿の採用によって酸素収率を向上させるとともに、製品付加価値の高いアルゴン収率を高めることにより、原料空気量を相対的に低減している。さらに、TSA吸着方式の採用により、製品窒素の採取量を従来よりも大幅に改善している。

##### (1) タービン圧縮機の採用

TOプラントに必要な寒冷を発生させる寒冷発生用の空気量の低減のために、最近のプラントでは**図2**に示すようなタービン圧縮機を採用している。寒冷発生原理は膨張タービンで空気を膨張させることによって寒冷を発生させるものであるが、寒冷発生に必要な空気量



**図2** タービン圧縮機 タービンと圧縮機を一軸とした高効率のタービン圧縮機を示す。

W(kg/h)は下記の関係にある。

$$W = Q / \Delta i$$

ここに、Q：必要な寒冷量(J/h)

$\Delta i$ ：エンタルピー差(ガス単位量当たりの熱量差)(J/kg)

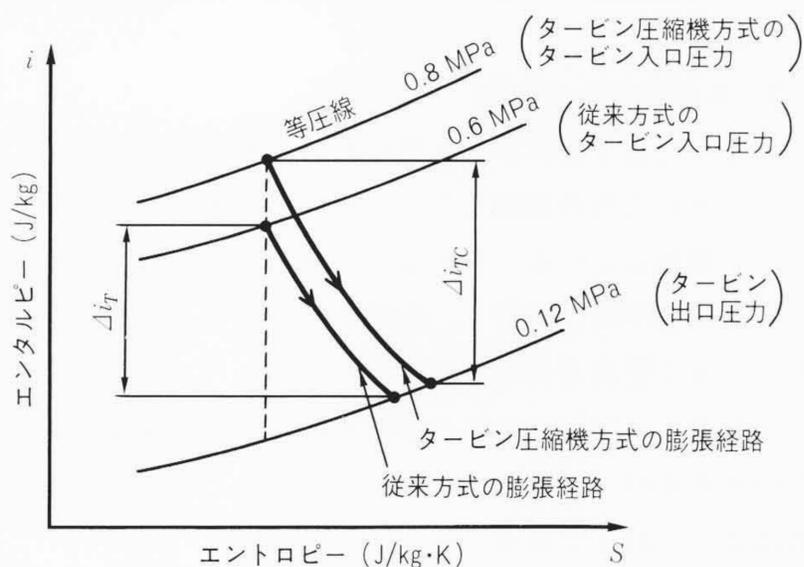
膨張タービンでの空気の膨張によるエネルギーを圧縮機側で回収することで、タービン入口の圧力を従来の約0.6 MPaから約0.8 MPaに昇圧することができる。エンタルピー、エントロピーから成る熱力学関係を**図3**に示すが、タービン圧縮機方式の採用によって $\Delta i$ をさらに大きくすることができ、先の関係から寒冷発生に必要な空気量を、従来方式の10%程度低減することが可能となった。

##### (2) 高性能精留分離技術

精留分離に必要な空気量を低減するためには、一定量の原料空気当たりの製品(酸素、アルゴン、窒素)回収率の向上を図らなければならない。

製品回収率を高めるためには、精留段数を増加させる方法がある。しかし、精留段数の増加は精留塔内での圧力損失の増大を招き、結果的に原料空気圧縮機の吐出し圧力を高め、電力原単位を悪化させることにつながる。このため、一段当たりの精留段の分離効率の向上とともに最適な段数配分技術が重要となる。特にアルゴンは、その沸点が酸素と窒素の中間にあたるため、精留塔上塔での抜き出し位置、抜き出し量の設定などの最適化が重要なポイントとなる。

日立グループでは、これまで納入したプラントごとに実測データ解析によるコンピュータシミュレーション技



**図3** タービン膨張時の熱力学関係 従来方式とタービン圧縮機方式のエンタルピー差の比較を示す。

術の精度確認を実施しており、精留塔の能力を最大限に引き出す技術を開発している。

製品アルゴン回収率について図4にTOプラントの推移を示すが、シミュレーション技術による最適化を図り近年急速にアルゴン回収率を改善しており、90%以上の回収が可能となっている。

### (3) 窒素採取量の改善

前処理として従来のREVEX方式のTOプラントでは、製品窒素量は製品酸素量と同様、原料空気の20%程度採取するのが限界であった。これは、製品の残りの排ガスをREVEXに氷結させた水分・二酸化炭素の掃気に必要としたためである。TSA方式のTOプラントは、吸着剤の再生に必要な排ガスは少量で済むことから、製品としての窒素採取量は製品酸素量の3倍程度まで採れ、これによって窒素採取に必要な原料空気量を相対的に低減することが可能となっている。

#### 2.1.2 原料空気圧力の低減

電力原単位の低減のためには、原料空気量の低減とともに原料空気圧縮機吐出し圧力の低減も重要である。日立グループでは精留塔入口圧力系、精留塔内部圧力系および精留塔出口圧力系の圧力配分最適化シミュレーションシステムを開発している。

#### 2.1.3 吸着塔再生用電力の低減

通常、吸着塔は2基設置され、交互に吸着および再生工程を繰り返し、連続的に水分・二酸化炭素の除去ができるようになってきている。吸着剤の再生は大気圧、420 K程度に加熱された排ガスを吸着工程の完了した吸着塔に導くことによって行われる。従来の外部断熱方式の場合は鋼製の吸着塔外壁自体も加熱していたが、内部断熱方式を採用することによって外壁加熱に要する熱量は不要となり、再生工程での加熱に要する電力の約6%を低減している。

### 2.2 エキスパート制御

前述したようにプラント運転員の労働事情は急変しており、運転人員の低減もしくは無人化の要求は、近年ますます増加している。このような背景のもとで、プラントの定常操作だけでなく、起動・停止に至るまでの全自動化が強く要求されている。

日立グループでは長年の運転実績のもと熟練運転者並みのエキスパート制御システムを開発している。主な特徴は次のとおりである。

#### (1) 起動、停止時の自動化

起動準備以降、機器の起動から精留条件の設定など定

常状態に至るまでの起動工程の自動化、定常状態から停止状態に移行するまでの自動化によって起動・停止操作の高信頼化とともに、起動・停止時間の短縮化を実現。

#### (2) 通常運転時の自動化

通常運転時の増・減量運転操作の容易化、特に付加価値の高いアルゴンについては常時運転条件に見合ったアルゴン収率を最大とする最適化制御システムを実現した。

### 2.3 パッケージ化

近年の労働事情で特に現地工事での作業員確保はきわめて大きい問題となっている。このため日立グループでは海岸に隣接する工場の恵まれた立地条件を最大限に活用し、従来では現地で組み立てていた精留塔、熱交換器周りの配管、保冷槽についても、工場内での大形パッケージ化を進め、信頼性の向上、納期および現地工事期間の短縮を図っている。

## 3 夜間電力利用の液体窒素製造装置

近年、関東地方を中心に夏季に電力消費量が昼間にピークとなり、時間帯によっては安定供給が困難な状態になっている。一方、液体窒素は年々需要が増加し全国的に品不足気味で、この需給緩和のために液体窒素製造装置の新設が相次いでいる。しかし、窒素ガスの液化のためには、標準ガス状態での液体窒素1 m<sup>3</sup>あたりに約0.6 kWもの多量の電力を消費するため、電力事情の緩和、電力コストの低減が必要となる。このような背景のもとで、比較的余裕のある夜間電力を使用する液化装置は、電力コストも安価なことからそのニーズが急増している。

以下、その特徴について説明する。

#### (1) 運転時間は夜間だけであり、これを最大限活用する

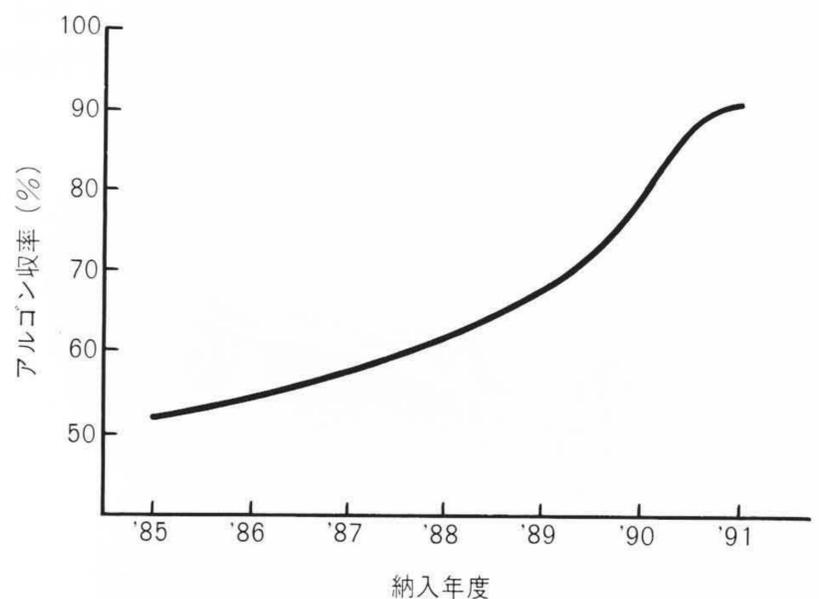


図4 アルゴン収率の推移 アルゴン収率の現状までの動向を示す。

ため起動・停止に要する時間を30分以下としている。

(2) 毎日の起動・停止操作を配慮し、設備の高信頼性化とともに全自動化を実現している。

#### 4 PPB対応のAPN-Uプラント(超高純度窒素製造装置)

半導体産業に使用される窒素ガスは、主として集積回路の前処理工程に使用されるが、半導体製品の高集積化に伴い窒素ガス中の不純物、パーティクルが製造歩留りに大きく影響するため、超高純度窒素の需要が増大している。代表的な半導体であるDRAM(Dynamic RAM)に要求される窒素グレード<sup>1)</sup>を表1に示す。

##### 4.1 APN-Uプラントのフロー

APN-Uプラントのフローを図5に示す。原料空気は圧縮機で約0.9 MPaに圧縮され、水素・一酸化炭素除去装置を通りPSA方式吸着塔で水分と二酸化炭素を除去

された後、空気熱交換器を通して精留塔へ送入され、精留塔上部から超高純度窒素として取り出される。

日立酸素株式会社 水戸製造所向けのAPN-Uプラントの外観を図6に示す。

##### 4.2 水素・一酸化炭素除去技術

水素・一酸化炭素除去装置内では、空気中の水素、一酸化炭素が酸素と触媒反応し、それぞれ水分と二酸化炭素への転化が行われる。特に一酸化炭素と窒素は沸点がごく近いことから、精留分離では分離が難しく、この触媒反応による二酸化炭素への高効率転化がきわめて重要である。触媒技術で重要な点は、高効率転化とその継続的な維持にある。原料空気中には、硫黄酸化物をはじめさまざまな触媒の被毒成分が含まれており、特に大気汚染の強い地域では初期活性を持続することは困難とされている。

日立グループでは長年の触媒研究の成果をもとに、高

表1 DRAM集積度と窒素ガスグレードの関係 DRAM高集積化に伴って要求される窒素ガスグレードおよび製品分析例を示す。

| 集積度(DRAM) |                        | 1 M       | 4 M      | 16 M       | 64 M      | 製品窒素分析例  |
|-----------|------------------------|-----------|----------|------------|-----------|----------|
| 不純物       | O <sub>2</sub> (PPB)   | 50~10     | < 5      | < 5        | < 1       | 0.3      |
|           | CO (PPB)               | —         | < 5      | < 5        | < 1       | 1.5      |
|           | CO <sub>2</sub> (PPB)  | —         | < 5      | < 5        | < 1       | 0.3      |
|           | CH <sub>4</sub> (PPB)  | —         | < 5      | < 5        | < 1       | < 0.1    |
| 露点        | H <sub>2</sub> O (PPB) | < 500     | < 100    | < 10       | < 0.13    | 1.5      |
| パーティクル    | 大きさ                    | ≥ 0.2 μm  | ≥ 0.1 μm | ≥ 0.1 μm   | ≥ 0.05 μm | ≥ 0.1 μm |
|           | 個数                     | ≤ 10個/CF* | ≤ 5個/CF* | ≤ 1個/10CF* | ≤ 1個/CF*  | 0~1個/CF* |

注：略語説明ほか DRAM(Dynamic RAM), PPB(Parts per Billion), 1 CF=0.0283 m<sup>3</sup>

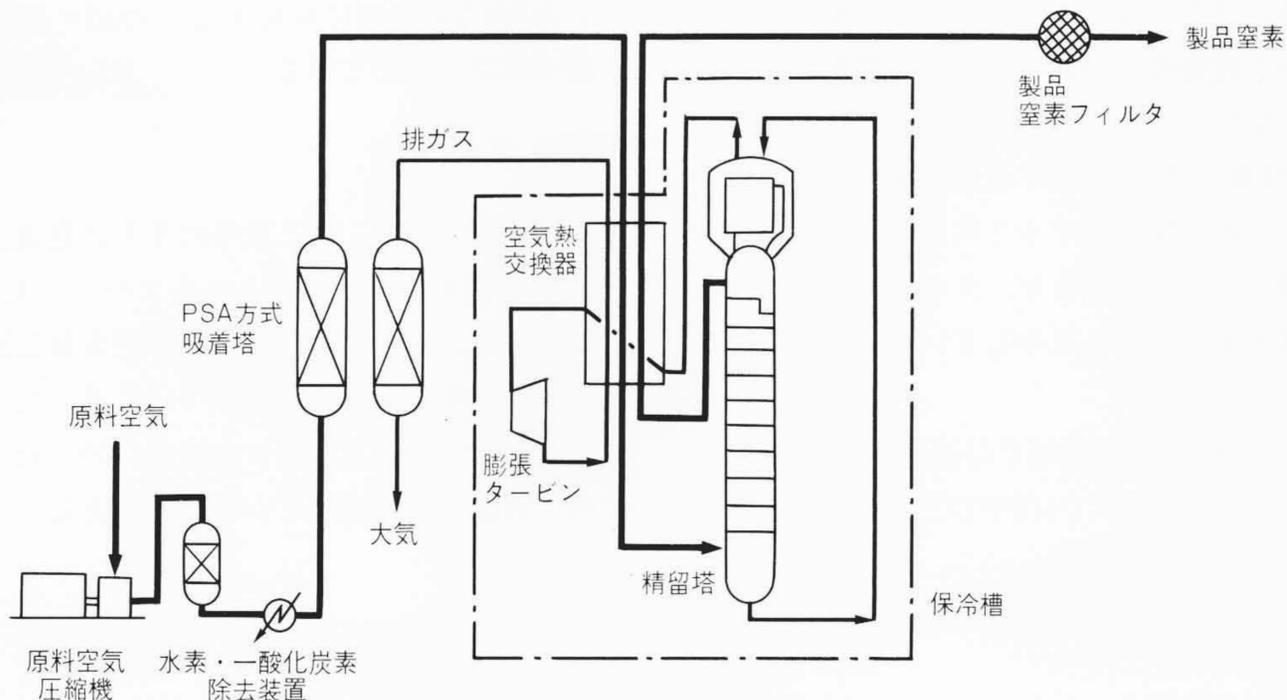


図5 APN-Uプラント(Automatic Pure Nitrogen Generating-U Plant)のフロー 不純物PPB(Parts per Billion)レベルを実現する超高純度窒素製造装置のフローを示す。

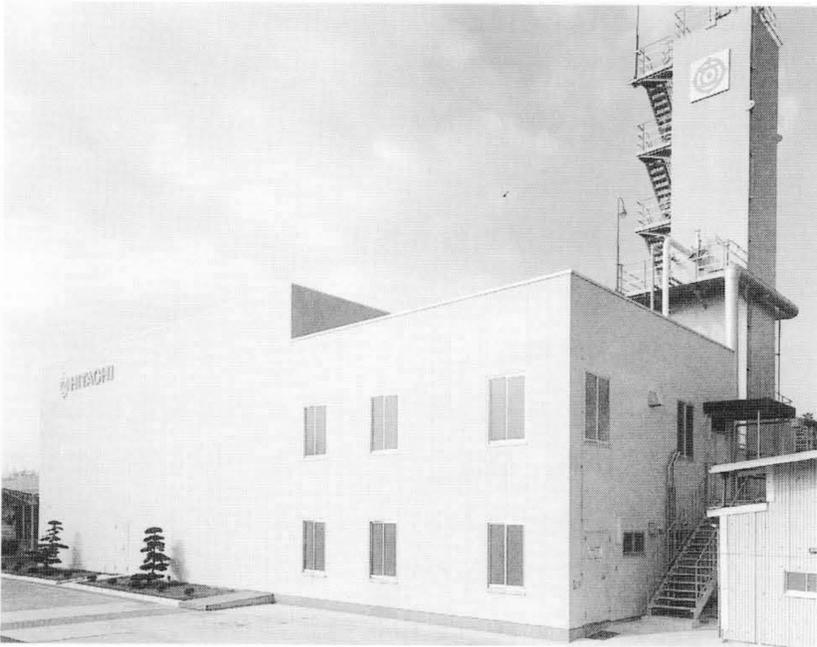


図6 日立酸素株式会社 水戸製造所納めAPN-Uプラント  
 ウルトラクリーン仕様半導体向け超高純度APNプラント (Auto-  
 matic Pure Nitrogen Generating Plant)の外観を示す。

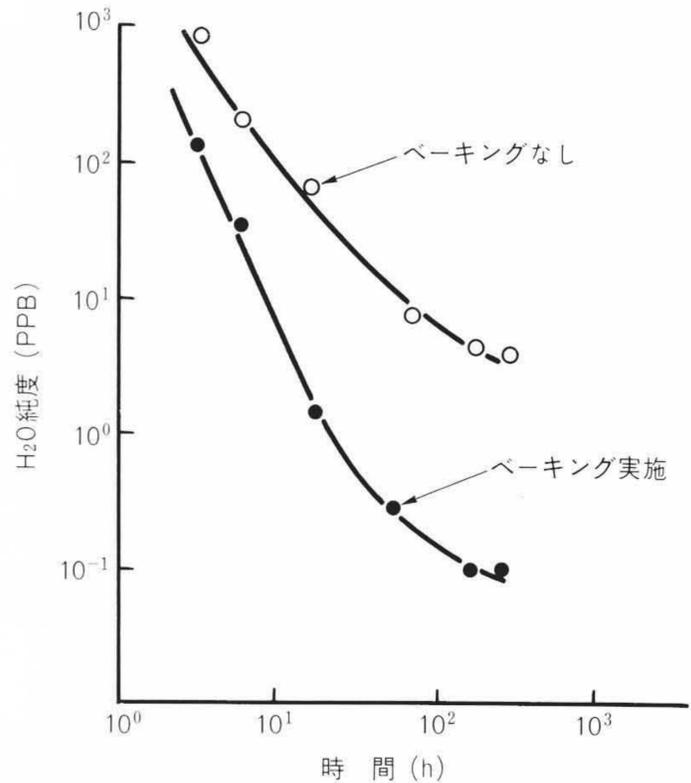


図7 ベーキングによるクリーン化 ベーキングによってアルミニウム内面がクリーン化されることを示す。

活性であるとともに耐被毒性の強い触媒を開発しており、すでに3年以上の運転実績を持っている。

### 4.3 超クリーン化技術

精留塔では、2章で述べたように高性能精留分離技術によって最適な段数配分を行い、PPBレベルの超高純度窒素を製造しているが、この清浄度を維持したままユースポイントまで送出する技術が重要な課題となる。

日立グループではクリーン化技術として定着してきた電解研磨管の採用、リークフリー継手の採用、デッドスペースレス設計<sup>2)</sup>などの一般的な配慮はもとより、精留塔、熱交換器、配管なども含めた総合的なクリーン化技術を研究している。またアルミニウム、ステンレスなど材質ごとのクリーン化特性についても研究しており、ベーキング(加熱することによって金属表面のアウトガスを排除する方法)技術を含め、それぞれの材質特性を考慮した設計を行っている。図7はアルミニウムのベーキングによる効果を検討した例であるが、クリーン化でベーキング実施の効果が大きいことを示している。

### 4.4 分析技術

PPBレベルの超高純度窒素評価では高度な分析技術が不可欠であり、日立グループではPPT (Parts per Tril-

lion) レベルまでの分析感度を持つ日立東京エレクトロニクス株式会社製のAPIMS、日立電子エンジニアリング株式会社製のパーティクルカウンター、日立金属株式会社製のクリーン仕様バルブ、マスフローコントローラなど総合的な分析技術の開発に取り組んでいる。

超高純度技術に支えられたAPN-Uプラントから採取される窒素の分析例を先の表1に示した。今後さらに厳しい窒素グレードが要求される64 Mビット、256 MビットのDRAM仕様に対応するため超々高純度窒素製造装置の開発を進めている。

## 5 おわりに

この論文では、ここ数年のうちに急速な変貌(ぼう)を遂げた省エネルギー形・エキスパート制御方式のTOプラントと、夜間電力利用の液体窒素製造装置、PPB対応の超高純度窒素製造装置について述べた。今後とも高効率の精留システム、超々高純度化のための開発などについても継続的に進めていく考えである。

### 参考文献

- 1) 猪口：ウルトラクリーン化の動き，ウルトラクリーンテクノロジー，Vol.2，46～47(1990-4)
- 2) 大見，外：超高純度ガス供給システム，半導体体基盤技術研究会，43～44(1986-9)