

PET(ポリエチレンテレフタレート)新連続重合プロセス

—プラント建設費低減とメンテナンス性向上の実現—

New Continuous PET Polymerization Process

佐世康成	Yasunari Sase	原田 進	Susumu Harada
鈴木宙夫	Michio Suzuki	中元英和	Hidekazu Nakamoto



PET連続重合パイロットプラント

日立製作所笠戸工場(山口県下松市)に建設したPET(ポリエチレンテレフタレート)生産量(公称: 70 kg/h)の連続重合パイロットプラントの外観を示す。

日立製作所はこれまで、高粘度処理装置の開発や、反応解析によるプロセス設計により、PET(ポリエチレンテレフタレート)連続重合プラントを数多く納入してきた。

近年、PETの需要増加に伴ってプラント建設が盛んに行われる一方、PET製品の市場価格は低下傾向にあり、その結果、プラントの建設費低減、ランニングコスト改善へのニーズが高まっている。

日立製作所は、建設費と動力原単位の低減、メンテナンス性の向上を目的に、主要反応器の数を少なくし、周

辺機器構成をシンプルにしたPET新連続重合プロセスを開発した。パイロットプラントを建設して実液による実証試験を行い、プロセスの検証や品質目標を確認するとともに、開発の主な目標である建設費と動力原単位の低減の見通しを得た。

このパイロットプラントでは、原料(テレフタル酸、エチレングリコール)からPET樹脂が連続生産でき、顧客要求の実験にも対応できる体制を整えている。

1. はじめに

日立製作所はこれまで、優れたかくはん性能を持つ横形二軸眼鏡翼重合機を最終重合機としたものを中心に、図1に示す五つの反応器から成るPET(ポリエチレンテレフタレート)連続重合プラントを世界各地に数多く納入してきた¹⁾。

PETは、繊維・包装・磁気テープ・飲料用ボトルなどの材料として広く使用されており、需要も顕著に伸びている。特に飲料用PETボトルは、ここ数年来世界的に普及し、原料PETの需要量が年約10%の割合で増加している。それに伴い、特に韓国、台湾、および東南アジア地域で、PETプラントの建設が盛んに行われており、プラントの建設費の低減やランニングコストの改善により、PETの生産価格を下げ、シェアを確保する努力が進められている。その結果、1系列当たりのプラント生産量も、1日当たり数百トン規模にもなっている。

これらの市況に対応するために日立製作所は、反応器

の数を従来の五つから三つに減らし、周辺機器構成もシンプルにしたPET新連続重合プロセスの開発に1996年4月から着手した。

1997年6月からパイロットプラントでの実証試験を始め、現在までにプロセスの実証と品質目標値を達成する見通しを得た。今後は、いっそうの品質向上と多品種対応のプロセス検証を行っていく考えである。

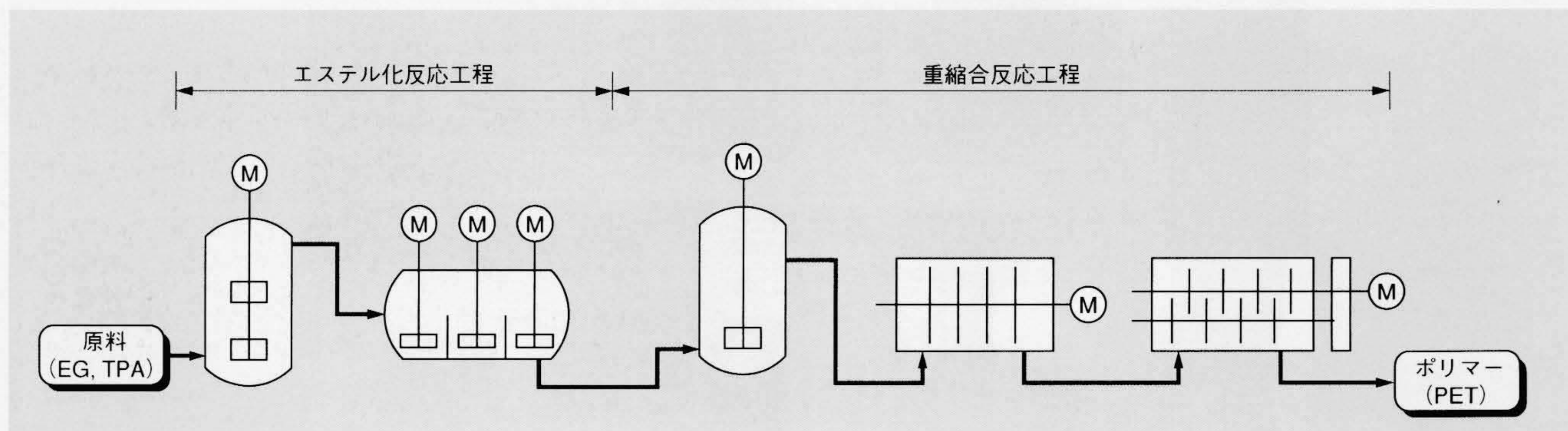
ここでは、開発したPET新連続重合プロセスと、反応器の概要について述べる。

2. 開発プロセスの概要

PET新連続重合プロセスの反応器構成を図2に示す。原料のエチレングリコール(EG)とテレフタル酸(TPA)をかくはん、混合してスラリー化させ、高温、弱加圧下でエステル化反応を行った後、高温、高真空下で重縮合反応を行ってPETポリマーを製造する。

このプロセスの特徴について以下に述べる。

(1) 新しく開発した反応器の構成では、エステル化反応



注：略語説明 EG(エチレングリコール)、TPA(テレフタル酸)、M(Motor)

図1 従来式のPET連続重合プロセスの構成

エステル化反応工程が二つと、重縮合反応工程が三つの反応器でそれぞれ構成した連続重合プロセスである。

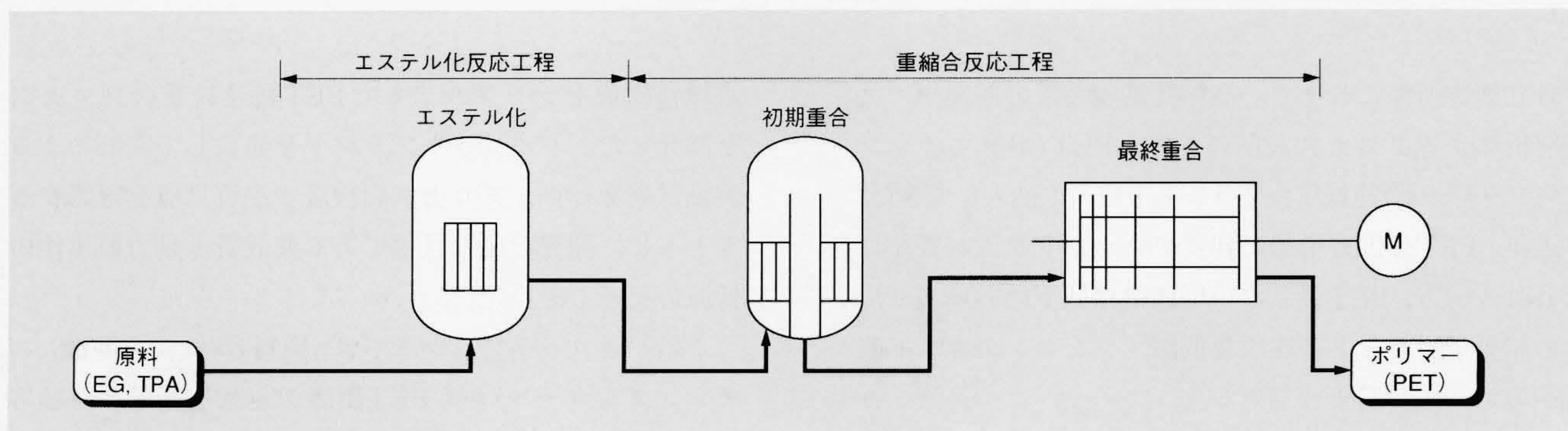


図2 PET新連続重合プロセスの反応器構成

新連続重合プロセスの反応器の構成を示す。

工程では従来の二つから一つに、重縮合反応工程では三つから二つにそれぞれ主反応器の数を減らすことにより、周辺機器、制御機器類、工事資材などを削減し、建設費の低減を図った。

(2) 高温(270~290℃)で反応を行うことにより、滞留時間が従来のプロセスに比べて約35%短くなった。滞留時間の短縮により、反応器の全容積を小さくすることができる。

(3) 反応器に搭載するかくはん機を従来の七つから一つに減らし、機械かくはん動力、メンテナンス、およびランニングコストの低減を図った。

(4) 減量運転(50~100%)に対応した設計を行い、生産量調整ができるようにした。

3. 主反応器の概要

反応器仕様を決定する場合、プロセスの性能上、各工程での流動・混合、伝熱性能などを検討する必要がある。

新プロセスに採用した反応器について以下に述べる。

3.1 エステル化反応器

エステル化反応工程では、反応温度を高くして反応速度を速くすることによって滞留時間を短縮し、反応器の数を従来の二つから一つに減らした。また、この反応器では、反応副生成物である水とEGの蒸気により、処理液の大きな自然循環流を生じさせる本体や内部熱交換器の構造を考案した。この循環流を利用して処理液の混合を行う結果、強制機械かくはんを必要としない反応器を採用することができた。

開発したエステル化反応器(ハイサーモリアクタ)の概要を図3に示す。この反応器には、内部に固定管板式熱交換器を設けている。原料のスラリー液は反応器の下部から供給され、熱交換器の管内で加熱される。このとき、反応によって生じた水と一部のEGは気化され、処理液と共に管内を上昇し、同図のような循環流が発生する。循環流量は、処理液内の密度差と流路の流動抵抗に依存する。この現象について、流動伝熱解析、気泡流解析プログラム(HISCOPE:日立研究所)²⁾による三次元流動解析と、モデル機による流動実験を行い、混合に必要な循環流量を求め、反応器本体と熱交換器の仕様の最適化を図った。

気泡流解析プログラム“HISCOPE”による流動解析結果を図4に示す。

3.2 初期重合反応器

重縮合反応工程では、処理液粘度範囲から2種類の反

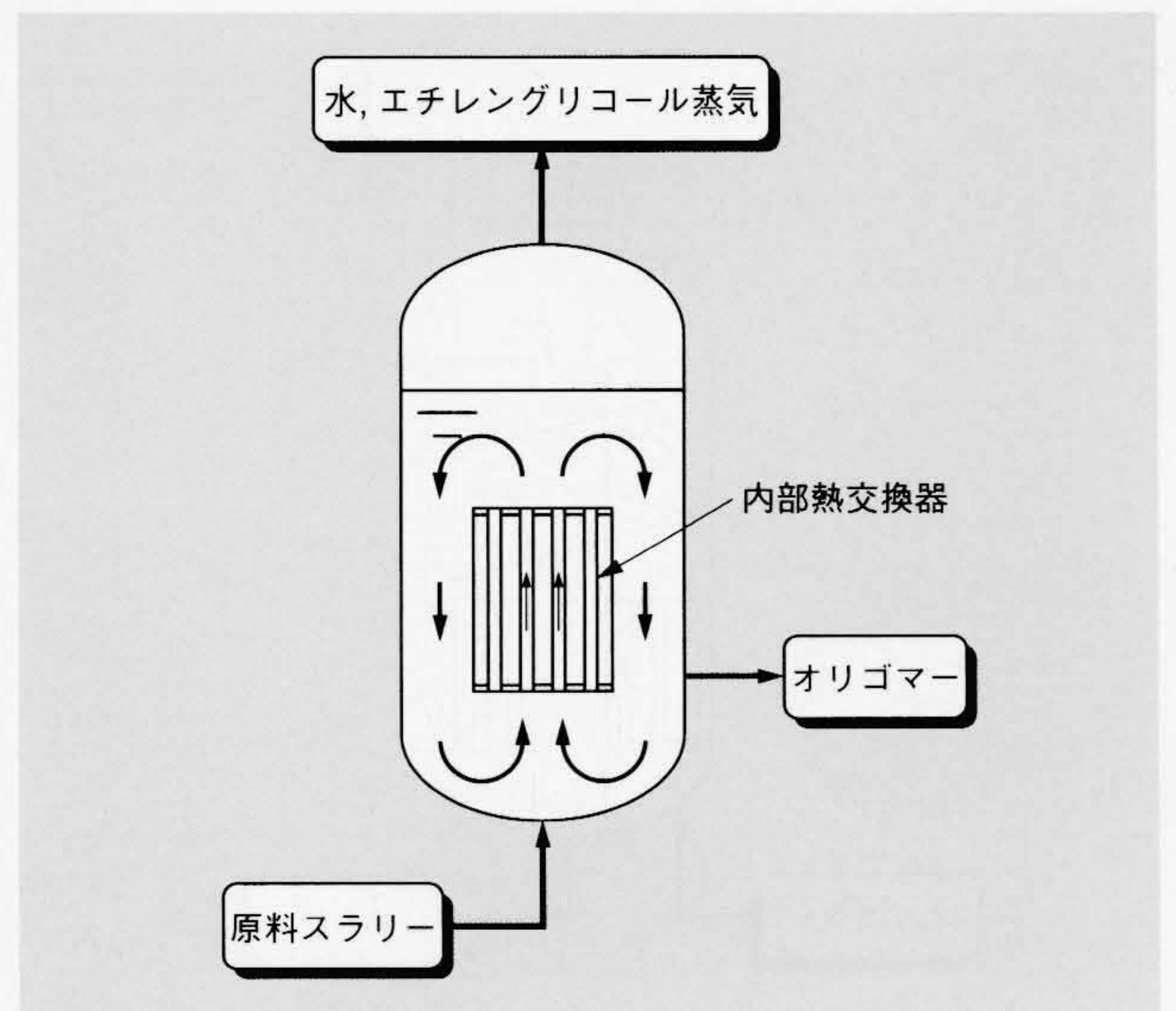


図3 エステル化反応器(ハイサーモリアクタ)

内部に生じた自然循環流による処理液の混合が行われている状況を示す。

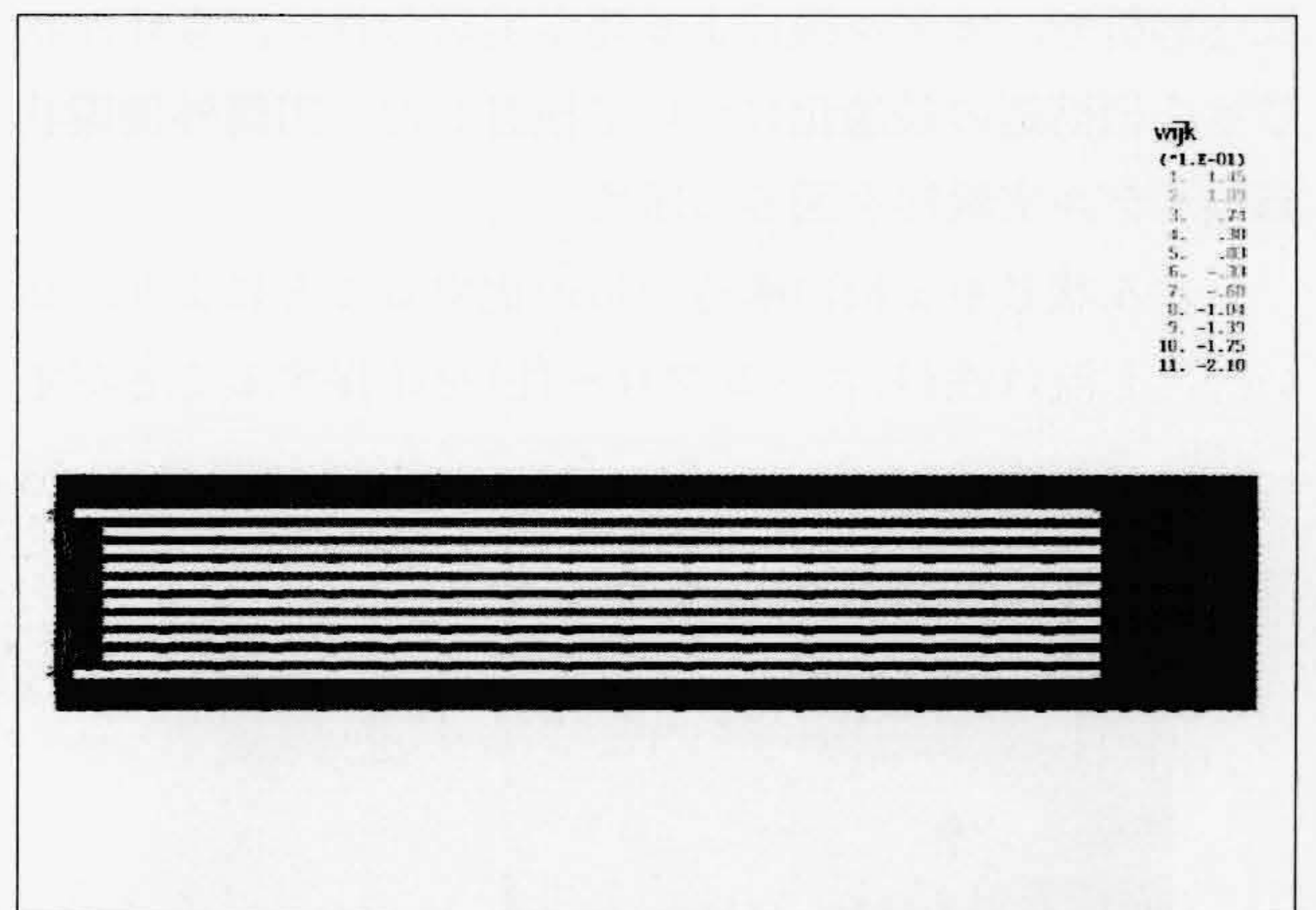


図4 ハイサーモリアクタの循環流解析結果

図の左が反応器下部を、右が反応器上部を示す。反応器内の流れ方向を実線で、流速を色で表示した。

応器で構成する。

らせん状のじゃま板の採用によって高いピストンフロー性能を実現した初期重合反応器の概要について以下に述べる。

初期重合反応器(アップダウンフローリアクタ)の概略を図5に示す。

この反応器では、オリゴマーの流入部に熱交換器が設けられている。処理液は管内で加熱されながら上昇し、熱交換器上方を流出した処理液は、中央円筒の外側をらせん状に上昇して、円筒上部でオーバーフローし、円筒管内を下降して反応器下部から流出される。ここで、円筒

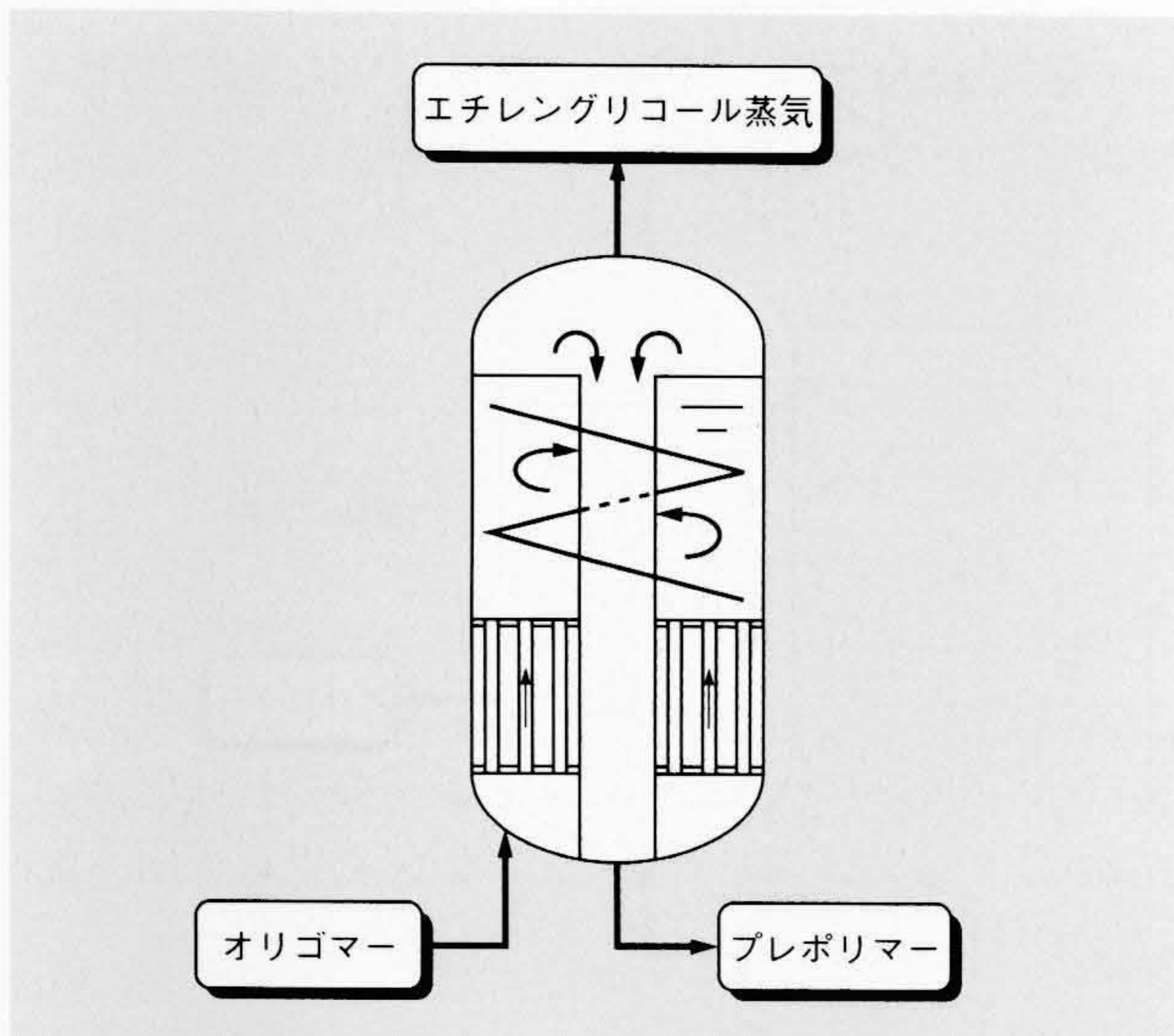


図5 初期重合反応器(アップダウン フロー リアクタ)
らせん状のじゃま板の採用によって高いピストンフロー性能を実現した。

外側の環状部での流れが混合性能を決定することから、反応解析や、モデル機による要素実験を行い、らせん状じゃま板構造の最適化について検討した。円筒外側環状部のモデル実験機を図6に示す。

らせん状じゃま板の構造を最適化することにより、高い押し出し流れ性(ピストンフロー性)を確保することがで

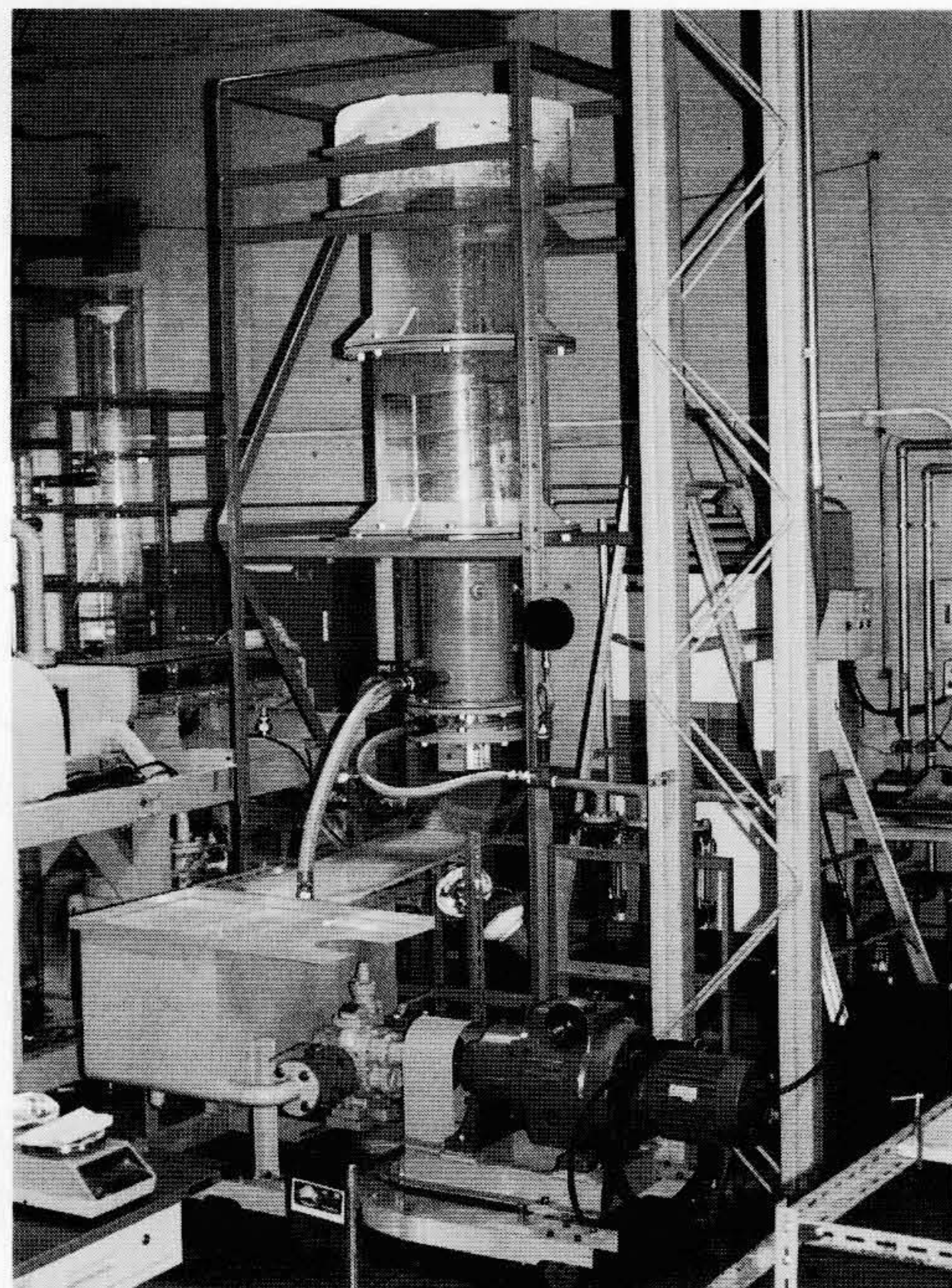


図6 初期重合反応器の要素モデル実験機
発生ガスを効率よく浮上、分離することにより、高いピストンフロー性を確保する。

き、この反応器出口での品質を安定化させることができる。

また、環状部ではEGガスとの気液混相流となるため、処理液中のガスホールドアップ特性を考慮し、モデル機で流動実験を行った。

3.3 最終重合反応器

最終重合反応器では、高粘度処理液を効率よく混合、反応させることが要求される。反応の促進とともに、処理液の粘度が上昇する。今回のプロセスでは、この反応器での粘度範囲が従来プロセスに比べて広いため、各粘度で効率よく混合、反応を促進させるためのかくはん翼の構造がポイントとなる。

この反応器(ハイブリッドリアクタ)の概要を図7に示す。処理液は、横形本体容器の側端から流入し、かくはん機によってかくはん処理された後、反対の側端から排出される。この重合器は、日立製作所が長年蓄積してきた高粘度液処理技術を応用して開発したものであり、次のような特徴を持つ。

(1) 内部に回転中心軸を持たない一軸かくはん翼

中心軸への処理液の付着と共回り現象を防ぐため、回転中心軸の無い一軸かくはん翼構造にした。

(2) 処理液の粘度に対応したかくはん翼配列

処理液の粘度範囲が重合器の入口から出口まで広いため、各粘度域で最適な混合と蒸発表面を形成するように、3種類の翼構造(ハイブリッド翼)を開発した。モデル実験と反応解析により、翼配列の最適化を図った。

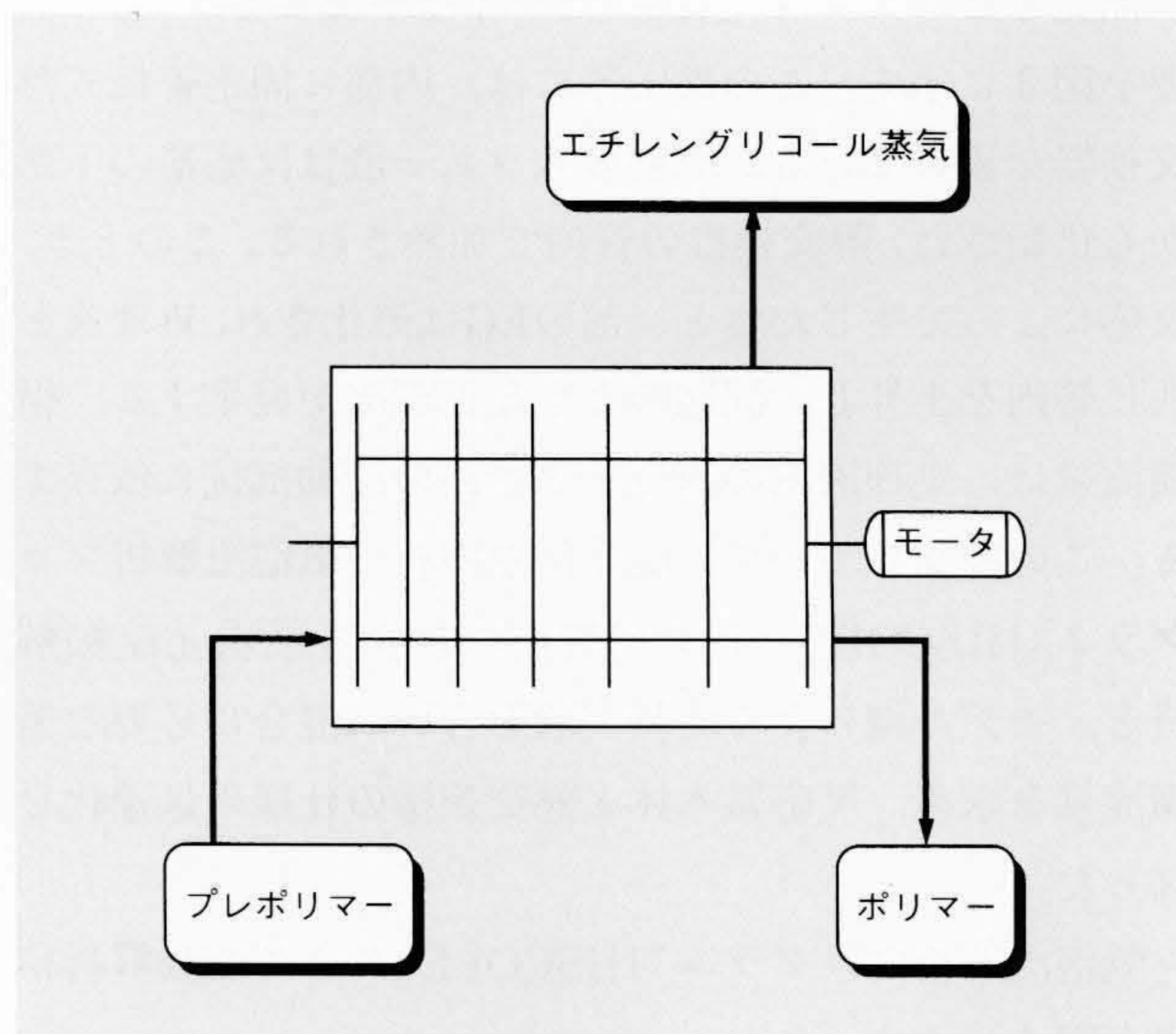


図7 最終重合反応器(ハイブリッドリアクタ)
粘度範囲に応じて最適な混合と蒸発面を形成する、新開発の3種類のかくはん翼を用いた最終重合器を示す。

(3) セルフクリーニング構造

長期にわたって品質の良い製品を得るため、容器内壁全面をかき取るかくはん翼構造を採用して、容器内壁面でのスケーリングを防止し、かくはんのデッドスペースを無くした。

(4) 高いピストンフロー性

品質を安定化させるため、ショートパスや逆混合の無い、高いピストンフロー性を持つかくはん翼構造を開発した。

この反応器は、上記のような優れた性能を持つことから、PET以外の重縮合系ポリマーの製造にも適用することができる。ハイブリッド翼の要素モデル実験機を図8に示す。

4. パイロットプラントの概要とPETの品質内容

上述した各要素実験結果に基づいて、1996年10月に日立製作所笠戸工場(山口県下松市)内にパイロットプラントを建設し、1997年6月から実液実験を開始した。

パイロットプラントのフローを図9に示す。パイロットプラントの全景を45ページに示す。

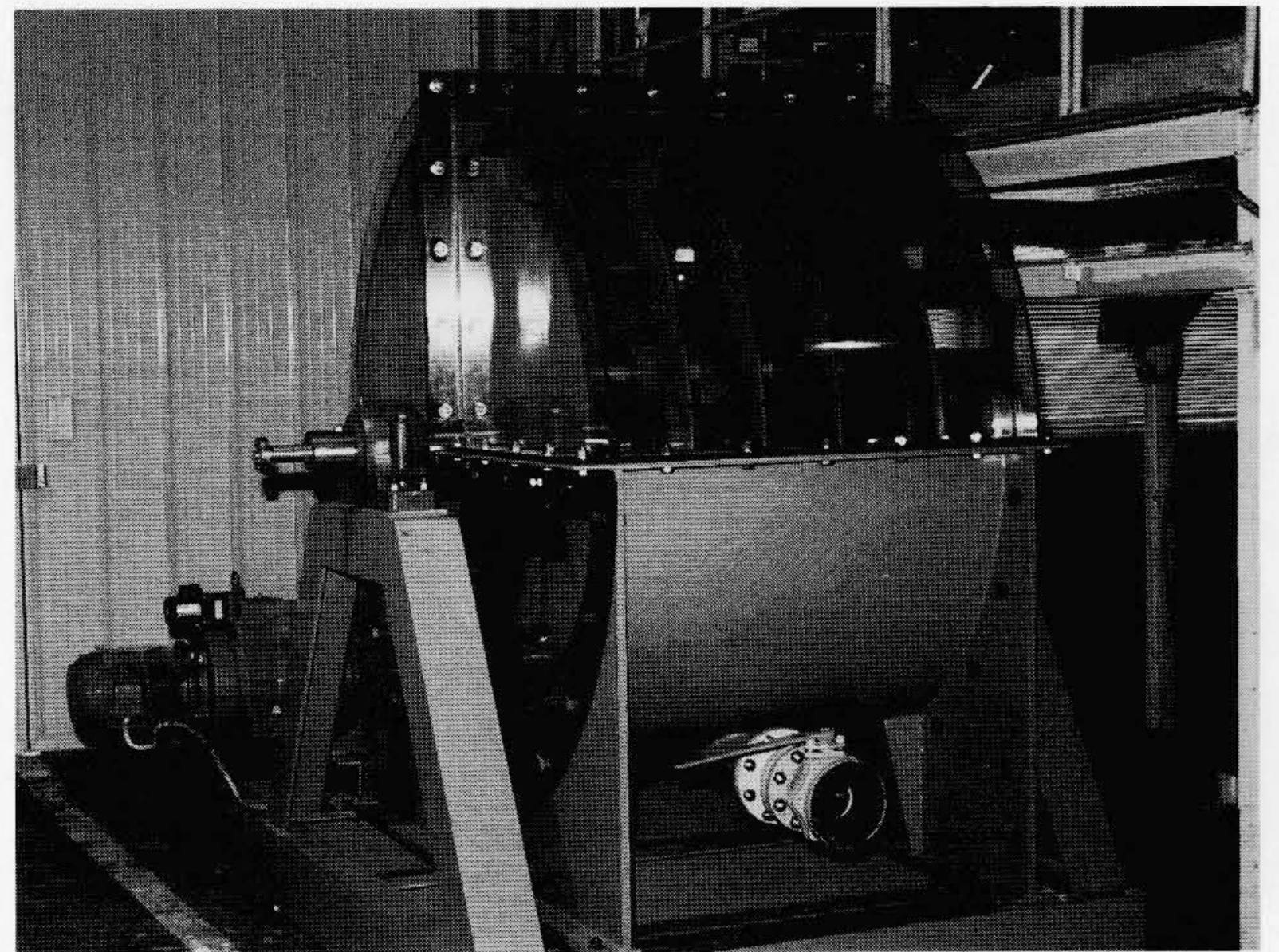


図8 最終重合反応器の要素モデル実験機

各粘度域で最適に混合し、蒸発表面を形成する3種類の翼を配列して、広い粘度範囲の反応液処理に対応する。

このパイロットプラントは、原料の調整からPET樹脂のペレット化生産まで一貫して行うことができる設備である。また、触媒・添加剤が製品PETの品質にどのように影響するかが確認できるように、触媒・添加剤の量の調整が可能であり、複数の供給個所を持っている。パイロットプラントでは、以下の内容について実証試験を行

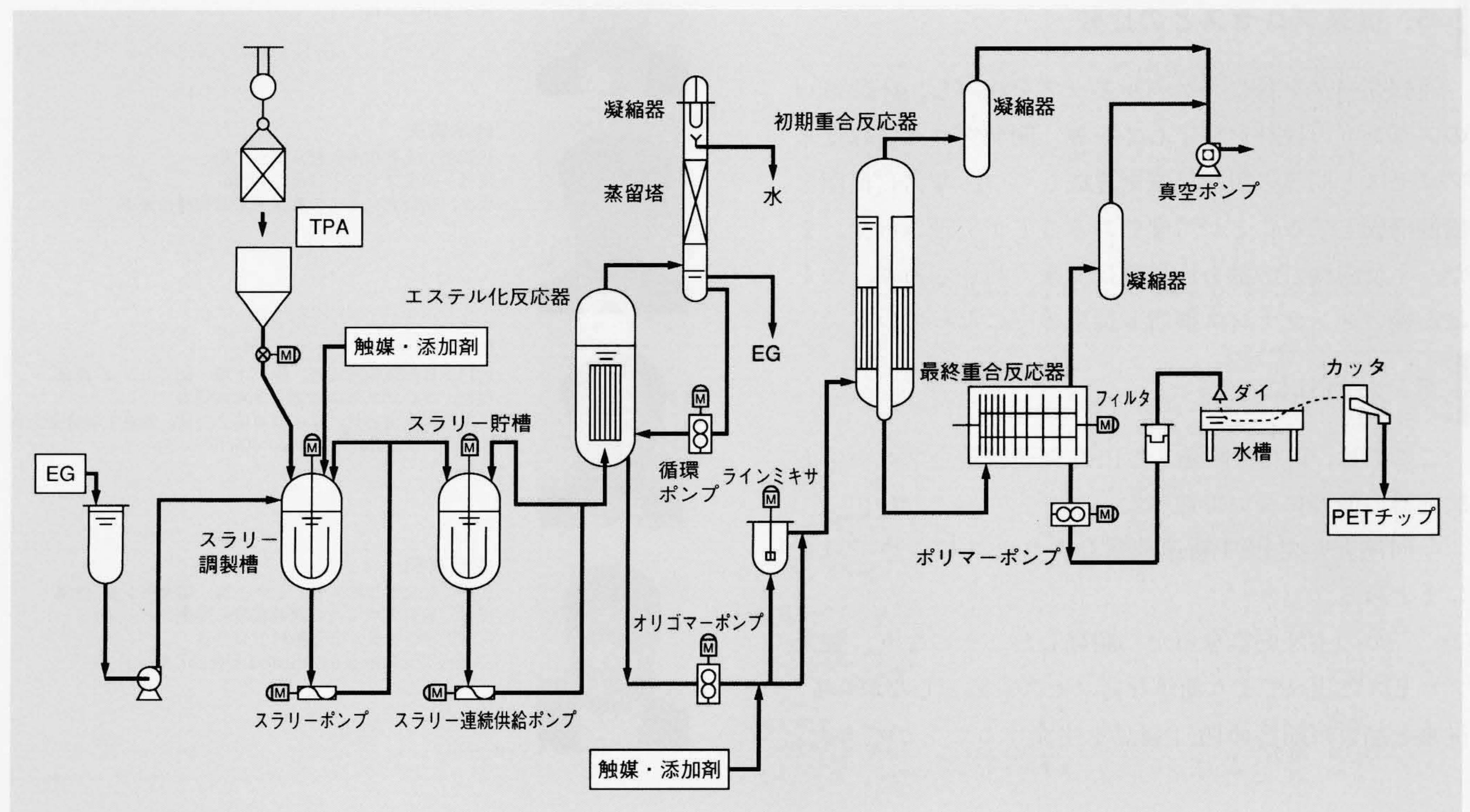


図9 PET新連続重合パイロットプラントのフロー

原料調整から多品種のPET樹脂の生産までの実験体制を整えている。

表1 品質目標値と分析結果

製品PETの各品質項目についての目標値と実験分析値を示す。

品質項目	目標値	分析値
極限粘度IV(-)	0.64	0.65
酸化(当量/10 ⁶ g)	≤30	26
融点(°C)	≥254	254

い、基本性能を確認した。

- (1) 各反応器の性能と設計手法の確立
- (2) 運転条件の最適化
- (3) 触媒・添加剤の種類、投入量や投入位置による品質への影響
- (4) 計測制御手法の確立

また、このプロセスで生産したPETの品質を評価するため、分析方法を整理し、標準化した。実液試験の結果、品質目標値を達成する見通しを得た。各品質項目の目標値と分析結果の例を表1に示す。

今後は、実験の積み重ねにより、いっそうの品質の向上を目指すとともに、多品種PETの製造に対応したプロセス検証を行っていく。

また、顧客の要求実験が可能な体制を整えており、顧客による品質の確認とともに、商業プラントの設計に反映していく。

5. 従来プロセスとの比較

運転データを基にスケールアップを検討し、日産300tのプラントの設計を完了している。開発プロセスは従来プロセスと同等の製品品質を達成しつつ、非常に簡潔な設備構成とすることが可能であることが実証された。また、主反応機での動力原単位は従来の約 $\frac{1}{6}$ であり、かくはん機のメンテナンス個所も従来の $\frac{1}{7}$ になっている。

6. おわりに

ここでは、新たに開発したPET新連続重合プロセスと反応器の概要について述べた。

今回開発したPET新連続重合プロセスについて以下にまとめる。

- (1) 三つの主反応器を新たに開発したことにより、従来プロセスに比べてより簡単なプロセス設備としながらも、従来と品質が同等のPET製品を生産することができた。

- (2) 主要反応器の動力原単位は日産300t規模のプラントで従来の約 $\frac{1}{6}$ 、メンテナンス個所も従来の $\frac{1}{7}$ になり、省エネルギー効果の高いプロセスである。

- (3) 50～100%の範囲で生産量調整の運転が可能である。

- (4) プラントの設置スペースを小さくすることができる。

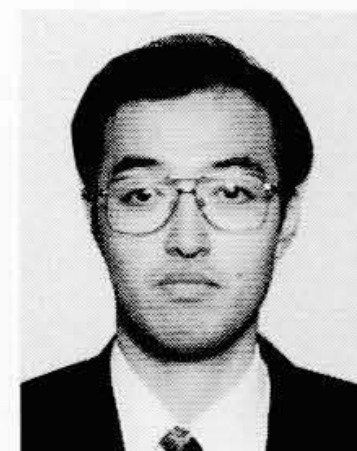
- (5) パイロットプラントでの実証試験により、製品PETの品質保証も可能となった。

今後、実際のプラント設計・建設に際しては、パイロットプラントの運転ノウハウを反映した、高効率で信頼性の高いプラントを提供し、社会に貢献していく考えである。

参考文献

- 1) 加治屋, 外: 重合プラントにおける高粘度処理技術と応用, 日立評論, 74, 4, 307～314(平4-4)
- 2) K. Kageyama, et al.: Reacting Flow Modeling of Ozone Contractor, Proc. of 13th Ozone World Congress in Kyoto(1977)

執筆者紹介



佐世康成

1994年日立製作所入社, 笠戸工場
流通・産業プラント設計部 所属
現在, 重合プロセスの開発・設計業務に従事
化学工学会会員



鈴木宙夫

1995年日立製作所入社, 笠戸工場
流通・産業プラント設計部 所属
現在, 重合プロセスの開発・設計業務に従事



原田 進

1979年日立製作所入社, 笠戸工場 開発センタ 所属
現在, 重合プロセスの開発業務に従事
日本機械学会会員, 日本冷凍協会会員, 低温工学協会会員
E-mail: harada@kasado.hitachi.co.jp



中元英和

1978年日立製作所入社, 笠戸工場 開発センタ 所属
現在, 重合プロセスの開発業務に従事
化学工学会会員, 日本機械学会会員
E-mail: nakamoto@kasado.hitachi.co.jp