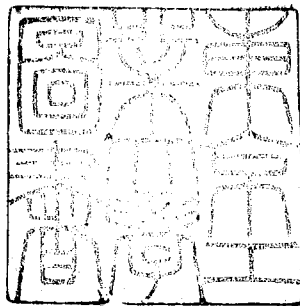


論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	回分式真空結晶缶の動特性と制御に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	梅谷陽二
Author(English)	
出典(和文)	学位:工学博士, 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:乙第289号, 授与年月日:1969年10月22日, 学位の種別:論文博士, 審査員:寺野 寿郎
Citation(English)	Degree:Doctor of Engineering, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:乙第289号, Conferred date:1969/10/22, Degree Type:Thesis doctor, Examiner:
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis

圓分式真空結晶缶の
動特性と制御に関する研究



梅谷陽二

東京工業
大学 267067

目 次

	頁
内容梗概	0-1
1. 序論	1-1
1-1 回分式真空結晶法の概説	1-1
1-2 回分式真空結晶法の特異性	1-6
1-3 本研究の目的・意義・位置づけ	1-8
要約	1-10
2. 回分式真空結晶法の準備的考察	2-1
2-1 回分式真空結晶法の運転シーケンス	2-1
2-2 各操作期間における制御量と操作量	2-6
要約	2-12
3. 制御系選定のためのプロセス自由度の新しい算定法の 提唱とその回分式真空結晶法への応用	3-1
3-1 序節	3-1
3-1-1 プロセス自由度の意義について	3-1
3-1-2 プロセスの熱力学的な検討	3-1
(i) プロセスの状態変数, 流れ束	

- (ii) プロセス変量とプロセス自由度
- (iii) 回分式プロセスの局所的定常性
- (iv) 回分式真空結晶缶の場合

3-2	工学系のプロセス自由度算定法.....	3-8
3-2.1	従来の算定法.....	3-8
3-2.2	筆者の算定法.....	3-9
3-3	回分式真空結晶缶への応用.....	3-13
3-3.1	従来の経験的な説.....	3-13
3-3.2	筆者の算定法の回分式結晶プロセスへの適用.....	3-14
	(i) 濃縮期への適用	
	(ii) 起晶期以後への適用	
	(iii) まとめ	
	要約.....	3-21

4.	回分式真空結晶缶の特性解析.....	4-1
4-1	濃縮期の特性解析.....	4-1
4-1.1	補助機器としての排気系統の操作と特性.....	4-3
4-1.2	基礎式.....	4-8
4-1.3	缶内真空度の動特性.....	4-9
4-1.4	気相側圧力の操作に対する沸騰液温度の変化.....	4-13
4-1.5	過飽和度の変化.....	4-21
4-2	起晶期の特性解析.....	4-27

	頁
4-2.1 基礎式-----	4-29
4-2.2 定常特性-----	4-32
(i) 結晶の定常成長速度	
(ii) 液位変動	
(iii) 加熱速度を含む定常関係式	
(iv) カタサの変化	
(v) カタサおよびその制御量としての意義	
4-2.3 動特性—過飽和度の動的特性-----	4-41
4-3 育晶期およびそれ以後の特性解析-----	4-43
4-3.1 育晶期の制御工学的な検討-----	4-45
4-3.2 基礎式-----	4-47
4-3.3 定常特性-----	4-48
(i) 結晶の定常成長速度	
(ii) 液位変動	
(iii) 加熱速度	
4-3.4 カタサの特性-----	4-52
(i) マスキット容積とカタサの変化	
(ii) カタサを一定に保持する場合の特性	
(iii) 煎き締めを行なう場合の特性	
(iv) 水煎きを行なう場合の特性	
4-3.5 動特性-----	4-59
(i) 過飽和度の動特性	
(ii) カタサの動特性	

	頁
4-4 特性の総括.....	4-65
4-4.1 定常特性.....	4-66
(i) 結晶の成長速度と育晶所要時間	
(ii) 結晶成長速度を含む定常関係式	
(iii) 液位の変化を含む定常関係式	
(iv) 加熱速度を含む定常関係式	
(v) カクサの変化	
4-4.2 動特性.....	4-73
(i) 缶内真空度	
(ii) 母液またはマスクの温度	
(iii) 過飽和度	
(iv) カクサ	
(v) 動特性のマトリクス表示	
4-4.3 回分式真空結晶缶のブロック線図.....	4-78
要約.....	4-81
5 実験.....	5-1
5-1 蔗糖用回分式真空結晶缶による実験.....	5-1
5-1.1 装置の概要.....	5-1
(i) 実験に供した装置の構成と規模	
(ii) 操業内容	
(iii) 検出端の計装	
(iv) 特殊な検出端	
5-1.2 定常特性実験.....	5-14

- (i) 排気系統の特性
- (ii) 濃縮期における過飽和度の上昇特性
- (iii) 結晶成長速度
- (iv) カタサの特性
- (v) 煎き締め期におけるカタサの変化
- (vi) 結晶成長速度を含む定常関係式
- (vii) 液位変動の定常関係式
- (viii) 加熱速度を含む定常関係式

5-1.3 動特性実験-----5-58

- (i) 過飽和度の動特性実験
- (ii) カタサの動特性実験

5-2 沸騰プロセスのモデル実験-----5-76

5-2.1 実験装置の概要-----5-76

5-2.2 特性実験-----5-80

要約-----5-85

6. 缶内マスクットの循環特性からの回分式真空結晶缶の
操業方法の検討-----6-1

6-1 循環特性に関する考察-----6-2

- (i) マスクット循環の意義と重要性
- (ii) 循環速度に及ぼす因子の準備的考察

6-2 循環特性の解析-----6-10

6-3 実験およびその結果と吟味-----6-16

- (i) 循環速度の測定方法
- (ii) 実験結果
- (iii) 理論式との比較および吟味

6-4 各種の操業方法における循環特性の
比較検討-----6-30

要約-----6-37

7. 回分式真空結晶缶の自動制御系-----7-1

7-1 操業能率と仕上り品質に影響を及ぼす。
カタサの最適プログラムの決定-----7-4

- (i) カタサの最適プログラムの評価に関する吟味
- (ii) マスキット中の結晶粒子の運動解析
- (iii) 最適な結晶粒子間距離の決定
- (iv) カタサの最適プログラムの決定

7-2 母液注入量と制御偏差に着目したカタサの
最適制御系の理論的考察-----7-23

- (i) カタサの最適制御
- (ii) 従来のプロセス制御系との比較検討

頁

7-3 回分式真空結晶缶の自動制御系の設計-----7-42

(i) 制御対象としての特徴および筆者の
制御系構成方針

(ii) 自動制御系設計の予備的考察

(iii) 自動制御系の設計

(iv) シミュレータによる自動制御系の吟味

要約-----7-74

8 結論-----8-1

8-1 本研究の工学的な意義-----8-1

8-2 本研究の結論の総括-----8-3

附録集-----A-1

使用単位表-----A-12

引用文献-----A-13

用語集-----A-23

記号集-----A-28

あとがき-----A-38

内容梗概

本論文は回分式真空結晶釜の動特性と制御に関する研究を述べたものである。ここで言う動特性とは、いわゆる制御工学的な特性を意味しており、制御系の設計に必要な定常特性と過渡特性のことである。

本題の回分式真空結晶釜は、広く化学工業全般で用いられている晶析装置の一種である。これは単位装置として化学工場内で非常に重要な位置を占めているにもかかわらず、いまだその自動制御はもちろんのこと、その特性すら十分に把握されていない状況である。そのため満足できる自動化が行ない得ない場合がすくなくない。筆者はこのような現状に着目して本研究を行ない、以下に概説する成果を得ることができた。

本論文の内容は、(A) 制御対象としての考察、(B) その特性の解析と実験、(C) 自動制御系の設計の3つの部分に大別できる。以下にこの分類にしたがって、内容のあらましと得られた結論について概説する。

(A) 制御対象としての回分式結晶釜の考察(1, 2, 3章)
第1章「序論」では、回分式真空結晶プロセスの一般的な装置構成を述べ、そのプロセスとしての制御工学的な特異性

に関する筆者の見解を示し、さらに本研究の目的とその工学的な意義について論じた。プロセスとしての特異性を明確にしておくことは、本研究全般の基本的な問題に通じるものである。これに関する筆者の見解はつぎの3点にある。すなわち、

- ① 結晶缶は、3相共存の非平衡系であること、
- ② 満足な制御を行なうためには特異な制御量を選ばざるを得ないこと、
- ③ 操作期間ごとに特性が変ること、

である。

連続式結晶缶にくらべて、本題の回分式結晶缶は、やもすれば研究する価値がないと見られがちである。しかし、一般に結晶プロセスというものは高品質で商品価値の高い結晶製品を作ることと目的とすることが多く、また結晶成長速度や結晶形状などの点からも考えるとき、結晶プロセスの連続化は、原理的にも経済的にも不可能に近い場合がきわめて多いことを指摘し、回分式結晶缶に関する本研究の工業的な有用性を論じた。そして、このことは最近の藤田らの調査報告すなわち化学工場における回分式結晶缶の保有台数は連続式のそれとほぼ等しいこと、これらが工場内で極めて重要なプロセスとなっていること、また学会誌への回分式結晶缶に関する発表件数が幾何級数的に増加しつつあること、などの客観的なデータから裏づけされ得ることを示した。

第2章「準備的考察」では、1回の回分操業を区分けする操作期間ごとの操業内容を示したのち、各操作期間においてとるべき制御量の選定を行なった。すなわち、ここで示した、操作期間は準備、濃縮、起晶、育晶、煎き締め、排出の6つの期間である。ただし、これらのうち制御を必要とする期間は、濃縮、起晶、育晶、煎き締めの4つの期間である。

つぎに、結晶の仕上り品質と操業能率などの点から、物理化学的にもっとも重要視せねばならない量、すなわち制御系の設計にとっても重要視せねばならない制御量を各操作期間について検討し、その結果、制御を必要とする上述の4つの期間において、缶内真空度、過飽和度、カタサ、缶内真空度がそれぞれ重要度の高い制御量であることを指摘した。

第3章「プロセス自由度の算定法」においては、筆者は制御量の個数を定めるためのプロセス自由度の算定式を導いた。ついでそれを本題の回分式真空結晶缶の各操作期間に適用して、制御量の合理的な数を決定することができた。プロセス自由度は制御量の数を決定するための合理的な概念であり、従来、これに類する算定法は平衡仮定のもとで導かれたものであり、本題のように非平衡性の強いプロセスには適用できない場合がある。

筆者の導いたこの算定法は本プロセスに効果的に適用できることが分った。その結果を表3-31にまとめた。

(B) 特性の解析と実験 (4, 5, 6章)

第4章「特性解析」においては制御工学的な特性を理論的に解析し、実験結果と合致する特性式を導くことができた。また、第5章「実験」においては理論的に導いたこれらの特性をすべて実験的に検証した。

ここで求めた特性式のうち、定常特性式は主として制御系の構成要素の決定およびシーケンス制御系の設計にとって不可欠であり、一方動特性式は自動制御系の設計はもちろんのこと、操業の最適化問題にも必要とされるものである。また、実験の大部分は実規模のプラントを用いて行なったから、本研究で導いた特性式は、スケールファクタなどによる換算を要しない実用性の高いものである。自動制御の基礎となる回分式真空結晶缶の動特性のなかでもっとも中心となるものは(4-4.2)式および図4-4.2に示したように理論的に3つの操作量(空気吸込流量、加熱蒸気流量、母液注入流量)と3つの制御量(缶内真空度、過飽和度、マスクットのカタサ)の複雑な相互干渉系である。特性実験の結果、筆者の導いた理論的特性式はいずれも十分な精度で成立することが検証された。

第6章では、加熱蒸発速度を左右する伝熱速度、偽晶の発生と結晶粒径のばらつきなどにもっとも密接な関係をもつマスクットの循環速度に焦点を合わせて検討し、その循環機構を理論的および実験的に追究した。つぎに慣習的な種々の操業方法に対する循環速度の比較を行ない操業能率の面からそれぞれの得失について論じた。

(c) 自動制御系の設計 (7章)

回分式真空結晶缶の最適な操業条件を、結晶の仕上り品質の向上、操業時間の短縮、原料としての供給母液の節約という実地的な評価基準のもとに研究し、本プロセスの自動制御系の設計を行なった。まず、7-1節では、偽晶の発生と結晶粒径のばらつきを最小限にとどめつつ、結晶の成長速度を最大化するためのカタサのプログラムを決定するため、カタサという制御量を物理化学的に考察した。その結果、カタサを直線に近い形のプログラムで上昇させる方法が最適であるという結論が得られた。このプログラムはカタサを直線的に上昇させるという従来の経験的な一方法が最適に近いということを科学的に裏付けるものである。さらに7-2節では、最適制御の評価基準として、カタサの偏差と母液注入流量の各自乗和積分値を最小にする評価式をとり、これをもとに、母液注入速度の最適操作量を動的計画法を用いて求めた。そしてその結果を従来のP, PI, PIDの各プロセス調節器を用いた自動制御系と比較したところ、PI-制御が最適制御に最も近い評価値をもつことが明らかになった。以上に得た結果を総括し7-3節において、つぎのような設計方針によって制御系の設計を行なった。

- ① 重要な制御量についてだけ非干渉補償を行なう。
- ② パラメータ変動の影響を受けにくい制御系にする。
- ③ 常用されている工業用プロセス調節器を用いる。

筆者の設計した制御系を図 7-3-9 図 7-3-10 にまとめた。
この制御系は上述の設計方針を満足すると同時に実現性の高い構成になっている。また、この制御系の応答を確かめるためアナログ計算機を用いて検討した。
その結果、この制御系の妥当性を検証することができた。

以上概説した本研究の成果を第 8 章「結論」に、総まとめした。本研究によって回分式真空結晶缶の制御と自動化のための科学的な基礎を与えることができた。

1. 序論

1-1 回分式真空結晶罐の概説⁽¹⁾

本節では、回分式真空結晶罐の工程面での位置づけおよびその装置の構成を概説する。すなわち、一般の化学工場内において回分式真空結晶罐を中心としたその前後の工程をまず述べる。そして次に、回分式真空結晶罐とその附帯設備を含む結晶工程の装置構成の概略を説明する。

溶液（すなわち、本論文では母液という）を過飽和状態に濃縮して、その溶質分を結晶化する工程を結晶化工程（または晶析工程）と呼び、そのために用いる装置を結晶罐（または晶析器）と言う。母液を過飽和状態にする方法には、(1)溶媒除去（蒸発濃縮）、(2)冷却、(3)断熱蒸発、(4)化学反応または他の塩添加、などの方法がある。本題の真空結晶罐は上記の(1)に属し、具体的には、罐内を排気装置によって真空状態^(*)に保ちつつ外部から加熱し、母液の蒸発と濃縮を行なう方法をとるものである。また、結晶罐を装置形式の面から分類すれば、連続式と回分式になるが、本論文では後者の回分式結晶罐について研究を行なう。近年の装置工業は概して連続式プラントを賞用する傾向にあるが、回分式プラントにも捨てられない特徴や利点がある。とくに結晶罐のようなプラントにおいては原理的に連続化できない場合もある。（附録(1-1)参照のこと）

(*)真空結晶罐の真空度は通常、30~200 mm Hg Abs. である。罐内を真空にすることによって沸騰温度が低くなるから、母液が加熱分解されやすいような場合に適している。また沸騰温度の低下により加熱源温度との温度差が相対的に大きくとれるから伝熱効率が高まる利点もある。

ちなみに、晶析に関するごく最近の城塚らの調査⁽¹⁾によると、国内における主な化学工場のうち、その85%の工場に晶析装置が設置されており、そのうちの96%の工場ではプロセス中の重要な工程になっている、と言われている。この調査結果は、化学工場における晶析工程がいかに重要な役割を果たしているかをもの語っている。さらに、その重要性が近年ますます増大しつつあることを示す証左として、同調査報告は最近15年間の海外における晶析に関する論文発表の件数に注意を向けている。すなわち、この15年間の発表件数は幾何級数的に増加しており、1963~1965年間の件数は1951~1953年間のおよそ5倍強にも達している。これと類似した傾向は国内の発表件数についても成立している⁽²⁾。晶析装置のうち、回分式ないし半回分式の晶析装置についての重要性は、すでに附録(1-1)において指摘した通りであるが、晶析装置の現有設置台数においても、回分式ないし半回分式の晶析装置は連続式のそれとほぼ等しいと言われおり⁽³⁾、他種の化学装置にくらべて回分式ないし半回分式の比率が非常に高い特徴が見られる。この調査結果もまた筆者の上述の説を裏書きするものである。

以上のように、連続化が常識となってきた化学装置の分野においても、本研究の対象である回分式結晶罐は、いまなおその存在価値は高いものである。

単位操作としての結晶化工程の大きな目的は、溶質分を固体状で分離するためと同時に、物質形態のなかで結晶形というもっとも純粋な形態で溶質分を分離するためでもある。また、結晶成長と結晶核の発生の機構は物理化学的に非常に微妙であり、まだまだ未知の現象がすくなくない。たとえば、ごく微量の不純物や生育条件の違いから、結晶形が大きく異なることがある。したがって、晶癖と総称されているこのような現象は、結晶工程の管理上大きな問題である。このような結晶化工程の特異性から、一般の化学工場では結晶化工程の前にならうず

母液精製工程が設けられており、ここでできるだけ母液の品質の制御と管理を行なうのが常である。

結晶化工程を中心としたその前後の工程を一般的に記述すれば図1-1-1のようになっていいる。母液製造と精製の工程は連続化されていることが多いから、本題のような回分式結晶罐の場合には、結晶化工程をはさむ流入端と流出端にはそれぞれ中継貯槽を設置せねばならない。図1-1-1に示した分離工程には遠心分離機、シックナー、オリバーフィルターなどがある。また乾燥工程は加熱空気の通風によって行なわれる場合がほとんどであるが結晶製品の用途によつてはこの工程が必要でないこともある。

さて、次に回分式真空結晶罐工程の一般的な装置構成を図1-1-2に示す。結晶罐本体への供給源として母液、温水、結晶種の3つをあげた。このうち、温水は罐内濃度もしくは過飽和度の調整用であるが、言うまでもなく母液の溶媒が水以外のときはその溶媒を用いねばならない。自然起晶や衝撃起晶^(*)などの操作を行なう結晶罐では結晶種調整槽は必要ではないが、近年の管理された結晶罐においてはこれらの起晶法を避けて、あらかじめ結晶種の調整を行なつてから起晶させる完全起晶法を採用する傾向にある。また、図1-1-2では排気系統として蒸気凝縮器と真空ポンプを分離して示したが、蒸気エセクターのように一つの機器で両方の作用を行なわせることもできる。

(*)起晶(目起しとも言う)には、①自然起晶(natural seeding)、②衝撃起晶(shock seeding)、③完全起晶(full seeding)の3種類がある。③の方法以外は結晶種の管理および制御が困難とされている。

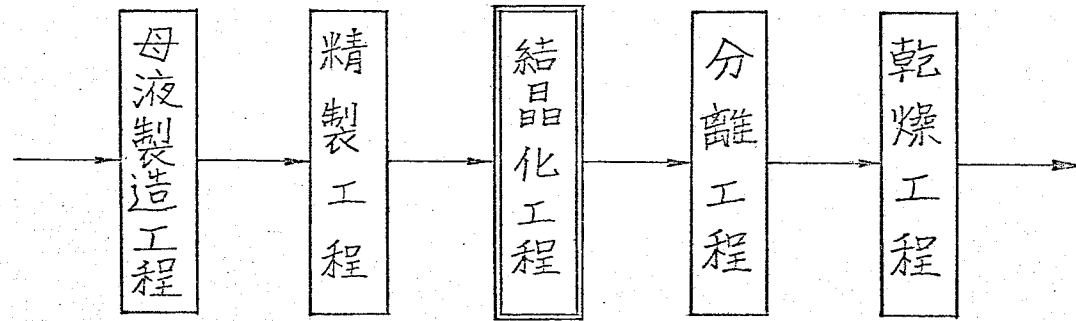


図 1-1-1 結晶化工程を中心とする前後の工程図

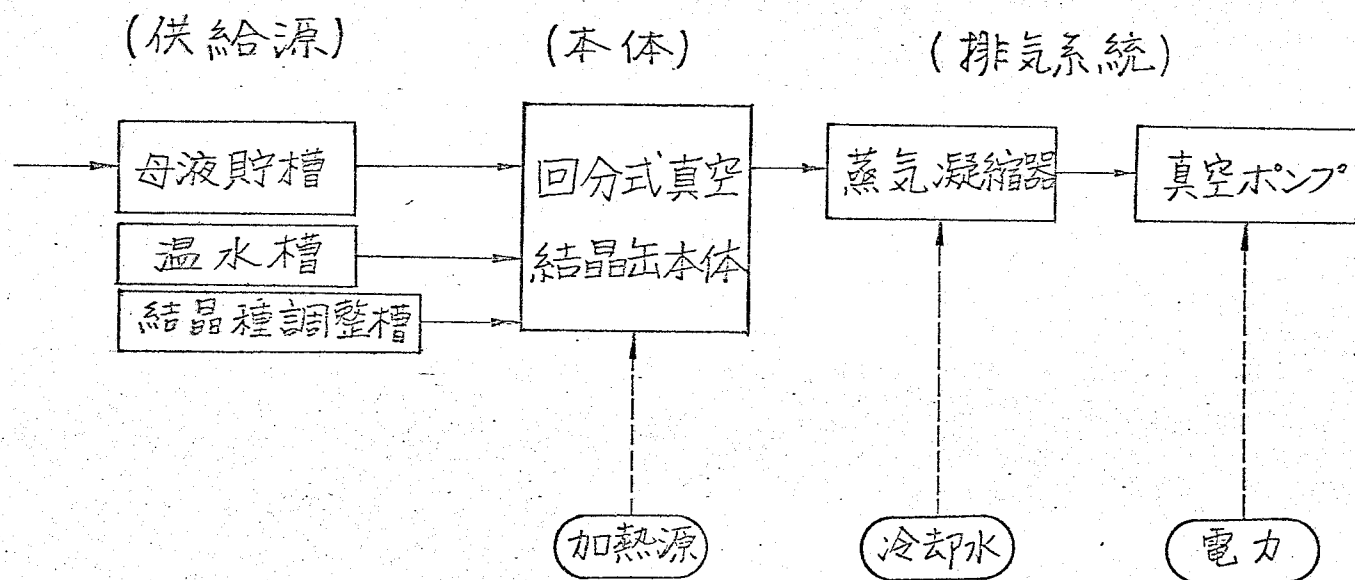


図 1-1-2 回分式真空結晶器の装置構成

1-2 回分式真空結晶罐の特異性

特性を解明しこれを制御するという立場から見た回分式真空結晶罐には、通常のプロセスの場合とは異なった特異性のあることを指摘する。

回分式真空結晶罐には以下に述べる3つの特異性がある、と筆者は考える。

- (1) 3相共存系の非平衡なプロセスであること^(*)。すなわち、真空結晶罐内には結晶という固相、母液という液相、蒸気という気相の3者が共存している。しかもこれらの相の間には熱と物質のはげしい交換流動が行なわれており、いずれの相も平衡な状態式で記述することは困難である。(このような化学プロセスの動特性については筆者の一般的な解析方法がある⁽¹⁾。)
- (2) 満足な制御を行なうためには、制御量として特異な状態量^(**)を選ばざるを得ないこと、すなわち結晶の発生と成長をつかさどる因子には、たとえば晶癖などのようにいまだ物理化学的に不明なものが多い。そのため、いかなる状態量を制御すれば必要かつ充分であるかというもつとも基本的な問題に対する確答は得ることができないのが現状である。したがって、制御量のえらび方はもちろんのこと、必要な制御量の数さえ決定的に算出する手段を欠いている。(ただし筆者は制御量の数については厳密な算定法を第3章で導いた)そこで次章で述べるように、カタサというような不明確な経験的な量を制御量の一つとして止むを得ず採用せざるを得ない結果となっている。(しかし筆者は第7章においてカタサの十分な検討を行なった。)

(*) ここで言う平衡もしくは非平衡という概念は広義の熱力学的な意味で用いた⁽⁶⁾。第3章でその具体的な説明を行なう。

(**) 熱力学的にプロセスを記述するための示強変数、示量変数および物性値を状態量と総称している。以下、この用語を使用する。

(3) 一回の回分操業をいくつかの操作期間に細分して、その各期間ごとに制御方法を変えねばならないこと。すなわち、通常の回分式プロセスにおいても一回の回分操業をいくつかの操作期間に分けて運転しているか、主要な制御方法は大きく変わることはまれである。これに反して、結晶化プロセスの場合には各操作期間ごとにプロセス特性が大巾に変化し、制御方法も根本的に変更せねばならない。

以上が回分式真空結晶罐の特異性と考えられるものであるが、この他に一般の回分式プラントとしての通性を併せもつていうことは言うまでもない。

1-3 本研究の目的および意義

自動制御技術は、サーボ機構とプロセス制御の2つの分野に大別できると言われている。前者のサーボ機構は、一つには自動制御発達⁽⁷⁾の歴史的な事情もあつて、すでにかなりの発展を示しているが、これに対して後者のプロセス制御の分野はまだまだ研究すべき余地が多いと考⁽⁷⁾えられている。このようにプロセス制御の発達が充分でない原因の一つは、プロセス自身の基礎的な追究が不足していた点にあつたと筆者は考える。すなわち、プロセス制御における制御対象のプロセス特性は、サーボ機構の場合にくらべて非常に把握しにくい点は疑う余地がないと思われる。しかし、より根本的な問題として、制御量の必要十分な数やその選択方法についても研究が不足しており、従来あまりにも経験に頼りすぎる傾向が強かつたことは事実であろう。このようなプロセス制御の従来の傾向を十分にわきまえぬ限り、最近の制御理論におけるめざましい成果や、計算制御に代表される新しいシステム制御技術などのプロセス制御分野への適用は皮相的なものに終るであろう、と思われる。

回分式真空結晶缶というプロセスは、上記の意味においてもっとも典型的である。すなわち、回分式真空結晶缶は前節に述べたようなプロセス独特の特異性をもっており、また近年になつて一応のプロセス制御が施されて運転されてはいるが、いまだに熟練した作業者の、いわゆる勘やこつに依存して運転される度合がきわめて大きいのが実情である。またすでに指摘したように、結晶化工程は一般に全製造工程のなかでもっとも重点的に管理し制御しなければならぬ工程に属している。

よつて、本論文において筆者は、制御量の算定と選択というプロセス制御のもっとも根本的な問題から考察を進めて、回分式真空結晶缶の特性を解明し、もっとも妥当と思われる自動制御系を設計することを目的とした。

またこの研究によつてもたらされる意義は、装置工業において重要な役割を果たしている回分式の結晶化工程の制御系設計が可能になるばかりでなく、作業者の経験と勘に大きく依存して操業されてきた結晶化工程の完全な自動化が可能になり、さらに最近の制御理論とシステム制御技術を有効に適用できる基礎を与える点にある、と考えている。

要約

まず、回分式真空結晶缶の単位工程としての位置づけを行ない、結晶工程の一般的な装置構成を述べた。すなわち単位工程としての回分式真空結晶缶は、前工程としての母液の製造および精製の工程があり、また後工程には結晶の分離および乾燥の工程がつづいていることを述べ、図 1-1-1 にその流れ線図を示した。また装置構成は図 1-1-2 に示したように、供給源、結晶缶本体、排気系統の 3 者からなることを述べた。

回分式晶析装置に関する内外の調査報告を基礎として、回分式真空結晶缶の研究の重要性と必要性について論じ、本研究の工業的な意義について論述した。

特性の解明と制御系の設計の立場からみた回分式真空結晶缶の特異性を論じた。この特異性に関する考察は本研究の目的とその工学的な意義を明確にするために行なったものである。筆者の見解によると回分式真空結晶缶には以下の 3 つの特異性がある。

- ① 3 相共存系の非平衡なプロセスであること。
- ② 満足な制御を行なうためには制御量として特異な状態量を選ばざるを得ないこと。
- ③ 回分操業中の各操作期間ごとにプロセス特性が大巾に変化し、したがって制御方法もそのたびに変更せねばならないこと。(これはシーケンス制御の必要性にも通じる。)

本研究の目的は、回分式真空結晶缶のプロセス特性を自動制御の立場から解明し、さらに最近急速に発展してきた最適制御理論の思想と手法を導入して、制御効果の高いしかも工業的に実用化の可能性の大きい自動制御系を設計することにある。

本研究の工学的な意義は、

- ① 装置工業において重要な役割を果たしている回分式真空結晶缶工程の制御工学的特性が解明され、さらにそ

の設計法に資すること、

- ② 従来から経験と勘に大きく依存して操業されてきたこの工程の完全な自動化が可能になること、さらに
 - ③ 最適制御理論やシステム制御技術などを有効に適用できる足がかりを与えることができること、
- にある、と筆者は考える。

2. 回分式真空結晶缶の準備的考察

2-1 回分式真空結晶缶のシーケンス

回分式プラントのシーケンスの設定、すなわち一回の回分操業における操作の順序の設定は回分式プラントの制御と自動化にとってもっとも最初の不可欠な課題である。本節では、回分式真空結晶缶にフリーズシーケンスを設定する。

連続式プラントにおいては、操業は連続的に行なわれ、装置内のすべての状態量は時間的に不変に、すなわち定常的に操作されている。しかし、本論文で扱うのは回分式プラントであるから、当然その操業は装置特有のシーケンスに従って行われている。この場合、装置内の状態量は必ずしも定常的であるとはいえない。

回分式プラントの1回の回分操業は一般にいくつかの操作期間に分けて考えることができる。本研究においては制御と自動化を目的としているから、制御の内容すなわち制御系の構造が同一のままに操作されている期間を一つの操作期間とする。一つの操作期間中の制御は通常いわゆるフィードバック制御を用いて行っている。これに対して各操作期間の切換えをシーケンスによって自動的に行なうためには、最近プロセス制御の分野で急速に発展してきたいわゆるシーケンス制御⁽¹⁾を施さねばならない。図2-1-1にもっとも基礎的と思われるシーケンスを例示した。このうち反応期はさらに細分化されていることが多い。

さて、筆者は回分式真空結晶缶のシーケンスを図2-1-2のように定めた。このシーケンスの設定は、回分式結晶缶の各方面における操業の実情をもとに、筆者の見解からもっとも合理的と思われるシーケンスに整理したものである。図示した6つの操作期間のうち、①準備期と⑥排出・洗浄期はとくに制御する必要のない期間である。また図に示した時間の割りつけは、筆者が実験を行った精糖用結晶缶にフリーズの概略値によったものである。

以下に、各操作期間について説明を加える。

①準備期。この期間の操作内容は装置と制御系の稼働

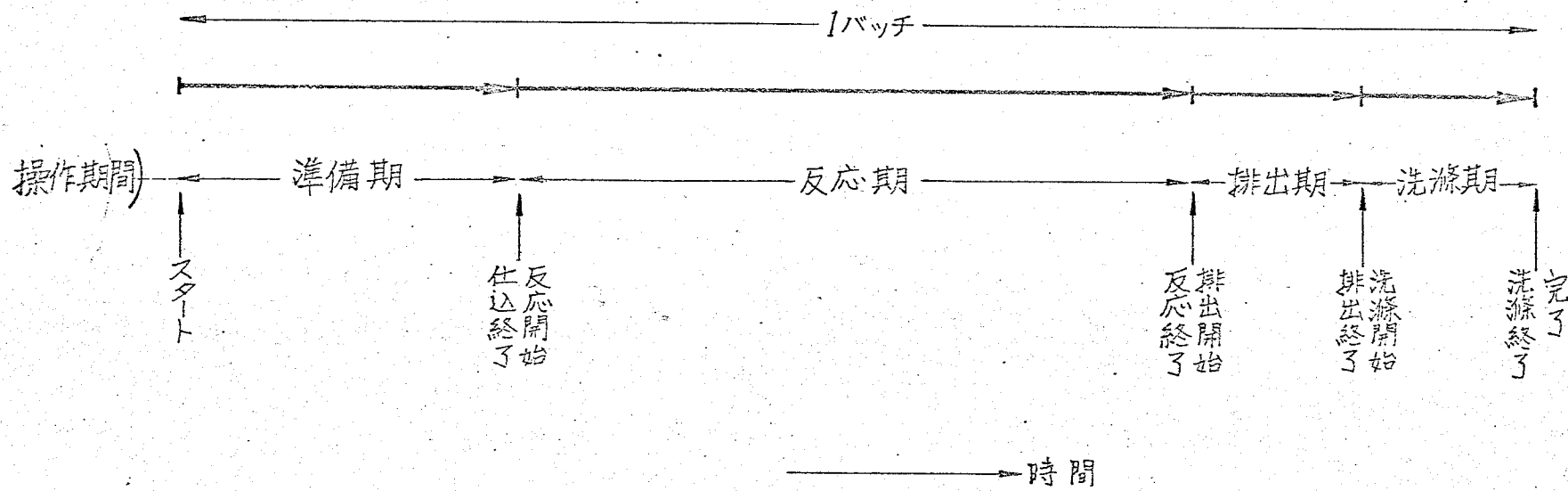


図 2-1-1 簡単なプラントの例

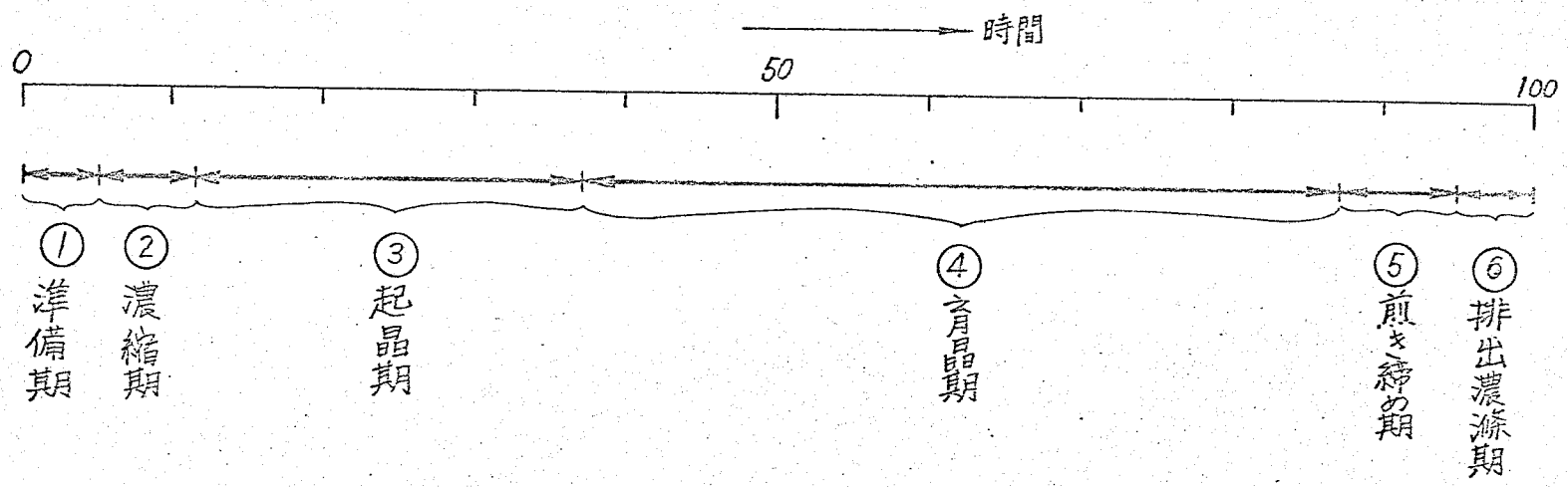


図 2-1-2 回分式真空結晶釜のシーケンス

準備および母液の定量吸込みである。すなわち、排気系統（真空ポンプおよび混合凝縮器）の始動、加熱用蒸気の吹込み、制御装置の始動、母液の吸込み、である。この期間内ではとくに制御する必要がなからこのように一括した。

②濃縮期。はじめに仕込んだ飽和濃度以下の母液を加熱しはじめから所定の過飽和度まで濃縮するまでの期間とする。母液の過飽和度は目起し時の結晶種の成長および自然起晶などに敏感に作用するから、その検出はかなり精確に行なわねばならない。次の起晶期への切換えは母液が濃縮されて、ある所定の過飽和度に到達した時に行なう。

③起晶期。所定の過飽和度にまで濃縮された母液に結晶種^(*)を投入してから母液をふたたび注入するまでの期間を起晶期とする。結晶種の投入すなわち目起し操作は操作技術の面では非常に重要な操作であるが、制御には直接関係がなからごく短時間の操作であるからこれをあえて起晶期に繰り入れた。起晶期は、本来、結晶種を注意深く成長させて母液全体を安定な懸濁液（マスクット^(**)または白下と呼ばれる。）にする期間である。過飽和状態の母液は準安定な状態であるから、種入れ時のさまざまのショックを受けることにより容易に自然起晶しやすくなっている。また注入された結晶種自身も結晶学的にかなり不安定で、結晶種同志の塊晶が発生したりまた消失したりする場合がある。⁽²⁾しかし、結晶種がかなりの大きさまで成長するとはじめて安定な結晶として成長をつづけるようになる。^(***)この期間の操作の要点は結晶粒子の安定化と粒子濃度の調整を行なう点にある。なおこの期間では母液の缶外からの注入は原則として行なわねい。起晶期終了の確認は主としてマスクットの視察によって行なうことかできるが、マスクットの流動度^(*)種晶ともいう。

(**) マスクット (massecuite) : 母液と結晶粒子との懸濁液を意味する。

(***) このような現象は筆者の実験によっても馬鹿証された。

(第5章 5-1.2 (iii) 参照のこと)

(後述のカタサに相当)を目安とすることもできる。(3)

④育晶期。前期で調整されたマスクットを“煎き上げる”操作を行なう期間を指す。ここで“煎き上げる”という操作は缶外から母液をふたたび注入しながらマスクットの量を徐々に増しつゝ結晶の育成を行なう操作のことを意味する。煎き上げ操作を行なうことによつて種々のパラメータ変動がおこるのは当然である。育晶期は回分式結晶缶操業のうちで中心的かつもっとも重要な操作期間であり、しかもこの操作期間はもっとも長リのか通常である。また、後述するようによつて、制御の面でも困難な点の多い時期にあつてゐる。

⑤煎き締め期。偽晶の除去と収率向上のために設けた操作期間で、いわゆる水煎きと煎き締めの二つの操作からなつてゐる。マスクットが所定の量にまで増大し、結晶粒子も所定の粒度に到達した時のマスクットの状態は非常に粘稠で流動性に乏しい。したがつてマスクットの循環が悪くなつて缶内の場所的な不均一さその他種々の弊害を伴ふことが多い。そこで、このような状態のマスクット中へかなりの量の温水を一時的に注入すると、(これは水煎きと言われたい)、流動性が急増し循環が良好になり、その結果これらの弊害を解消できる。また偽晶が溶解あるから粒度分布が揃ひ、それと同時に溶解した偽晶は煎き締めによつてやがて結晶粒子に再び晶出するから収率を向上させることができる。

⑥排出・洗滌期。完成したマスクットを缶底から排出し、みきつづき缶内をスチームまたは温水で洗滌する期間を指す。したがつてこの期間の制御はマスクット温度以外ほとんど考える必要はないと言える。

以上の操作期間のうちで、制御の面で重要な期間はすでに述べたように②濃縮期、③起晶期、④育晶期、⑤煎き締め期である。したがつて次節以降では主としてこれらの操作期間に着目しながら論じてゆくことにする。

2-3 各操作期間における制御量と操作量

回分式真空結晶缶の特性を解明しその制御系を設計するためには、まず各操作期間における制御量と操作量を定めねばならない。すなわち、具体的には“リカなる”制御量と操作量を“いくつ”選ばねばならないか、ということである。すでに述べたように、制御量と操作量の“一意的な”選定はとくに本題のような複雑な回分式プロセスの場合には困難である。そこで本節では、選ぶべき制御量と操作量の種類と数の両方を、操業の実情を加味して以下のように定めることにある。

まず選ぶべき制御量の数は周知の如くプロセス自由度の数に等しい。⁽⁴⁾ ところが本題のような回分式でかつ非平衡性の無視できないプロセスに関するプロセス自由度の算定法はまだ研究されていなかった。そこでこの重要な問題を解決するために、筆者は非平衡熱力学の手法を用いて基礎的な考察を行ない、プロセス自由度を算定するもっとも一般的な算定法をあたらしく導くことに成功した。(第3章参照のこと)、そしてこの筆者の算定法を本題の回分式真空結晶缶に適用し、各操作期間における妥当な制御量の数を定めることができた。これに関する詳細は第3章に述べるが、本節では前もってその結論を用いることにする。すなわち、第3章の結論(表3-3-1参照)によると、各操作期間における制御量の数を以下のように選べば充分である。

濃縮期 …… 1,	起晶期 …… 2,
育晶期 …… 3,	煎き締め期 …… 1,

つまり操作量の数は原理的に制御量の数に等しいかもしくはそれ以上選べば充分であることが分かっており、したがって操作量の数は上に示した制御量の数、もしくは必要に応じてそれ以上の数を選ぶこととする。

すでに指摘した通り、結晶化プロセスには未だ物理化学的に不明確なことが多い。たとえば結晶の成長速度を支配

ある因子としてここでは過飽和度、攪拌速度、温度などを取り上げたが、これ以外にも定量化できないうつかの因子が作用していると言われている。⁽⁵⁾ したがって制御量の種類については、これを一意的に決定することは不可能であると言わざるを得ない。そこで、筆者は従来経験的に採用されてきた種々の制御量を検討し、その中からもっとも適当と思われる量をあてに述べた数だけ採択することにした。この採択に際して制御量の物理化学的合理性はもとより、検出方法の難易さもあわせて検討した。以上の考察と基準にもとづき、筆者は回分式真空結晶釜の各操作期間における制御量と操作量を表 2-2-1 のように選定した。

以下、表 2-2-1 の各項の選定について筆者の持った見解を述べる。まず濃縮期は母液を起晶に適した過飽和度まで濃縮するという操作が主目的であり、また母液の組成に変化を来たさないうちで速やかに加熱、濃縮あることが要求されている。ゆえに母液の過飽和度は常に検出せねばならぬけれども、これを制御する必要はまったくない。濃縮期の制御量として一般にもっとも多く採用されているのは釜内真空度であり、筆者もこれを適当と認める。なぜなら釜内真空度を制御することによって母液の沸騰温度を間接的に制御することができるからである。^(*) さて、この制御量に対する操作量として混合凝縮器の冷却水流量を变化させる手段がとられていることが多い。この操作量は釜内で発生した蒸気を排気する排気速度を操作する方法として理想的と考えられるが、筆者の経験によると、たいていの混合凝縮器の排気速度は冷却水流量のごく小さな変動範囲についてしか追従することができない。(第 4 章 4-1-1 参照のこと) すなわち操作部としての比例範囲が非常に小さい欠点がある。これは混合凝縮器の構造上止むを得ないことであろうと思われる。一方、筆者の経験

(*) 溶液の沸騰温度は厳密には圧力と濃度に関係するが、濃度上昇に伴う沸騰温度の変動は通常の結晶釜操業条件下では無視できる程度であることをあらかじめ確かめておいた。

表 2-2-1 各操作期間における制御量と操作量

操作期間	制御量	操作量
濃縮期	缶内真空度	空気吸入速度(または冷却水流量)
起晶期	缶内真空度 過飽和度	空気吸入速度(または冷却水流量) 加熱蒸気流量(または温水注入速度)
育晶期	缶内真空度 過飽和度 力夕サ	空気吸入速度(または冷却水流量) 加熱蒸気流量 母液注入流量
煎き締め期	缶内真空度	空気吸入速度(または冷却水流量)

によると、缶内へ外気を吸入させる方法が良結果を得ることが分かった。この方法は、真空ポンプの排気容量が大である場合充分に余裕のある点に着目して考案したものである。実験の結果、この方法は応答速度が早く、しかも設備費が格段に小さい、という操作部としての有利な条件を備えていることが分かった。(第5章 5-1-2(i)参照のこと) なお、この缶内缶内真空度という制御量は前記締め期に至るまでの期間、そのまま制御量として採用する。

起晶期の制御量としては、この期間のもっとも重要な操作目的から考えて、母液の過飽和度をつけ加えねばならないことは言うまでもない。過飽和度という量は後述するように母液の温度の関数で定義されている量である。したがって過飽和度の制御を行なうには必ず上記の二つの量、温度と濃度もある関数関係に保ちながら制御する必要のあることが分る。しかしながら、過飽和度の制御のために母液温度を操作することは、必然的に母液の品質劣化を助長する結果となる。したがって母液温度はそのまま定値に制御しながら主に濃度で過飽和度を操作する方がより秀れている、と筆者は考える。

このような考えにもとずき、過飽和と缶内真空度をそれぞれ独立な制御量として表示した。この場合の過飽和度制御は、上述の意味において濃度制御と等価である。つぎに過飽和度に対する操作量として加熱蒸気流量を選ぶことは、濃縮缶や他種の結晶缶の例をあげるまでもなく適当である。ただし、加熱蒸気流量に制約のある場合は止むを得ず循環用の温水を用いることも考えられる。

もっとも中心的な操作期間である育晶期では、第3章の結論によつて、3つの量を制御すれば充分である。このうち二つは起晶期と同様に缶内真空度と過飽和度とする。育晶期では結晶はすでに定常的な成長を行なっているから残りの1つは結晶の状態量を規定する量でなくしてはならない。ところが従来このマスクット中に浮遊する結晶の状態量を表わす物理量のがかて制御に通した量はほとんどなく、したがって止むを得ず検出しやすいう量を用いて間接的に

結晶の状態を推定するのが常であった。たとえば缶内マスクットの濁度、電気伝導度、熱伝達率などの量から間接的に結晶粒子の大きさや含有容積率などを推定してきた。(6) そこで筆者は、これらの経験的な量のなかでカタサ(*)という量が育晶期における制御量の一つとして通じていると判断した。その第一の理由は、カタサは近似的にマスクットの見かけ粘度もしくは流動度を示している量であり、この量は間接的にマスクット中の結晶粒子の容積含有率を示しているからである。第二の理由は、育晶期においては、マスクットの缶内循環速度もしくは流動速度が重要な制御要因であるが、幸い、これらをカタサという制御量によってある程度規定あることかできることか分ったからである。ゆえに、育晶期における制御量として缶内真空度、過飽和度、カタサの3つを選ぶことにした。つぎにカタサに対する操作量として、母液注入流量を用いければよいことは明らかであるから、結局育晶期における操作量はそれぞれ外気吸入流量(または冷却水流量)、加熱蒸気流量、母液注入流量を選ぶことにした。

最後に煎き締め期における操作目的は、育晶期間で十分に育成したマスクットの最終的な仕上げを行なう点にあるから、マスクットの温度を元制御しておけば充分であると考えられる。そこで煎き締め期の制御量および操作量は、濃縮期とまったく同様に、それぞれ缶内真空度および外気吸入速度(または冷却水流量)とした。

以上が各操作期間における制御量と操作量の選定に関する筆者の見解である。以下においてこれらの制御量と操作量を用いて議論を進めてゆくことにある。

さて、本題の回分式真空結晶缶のような多変数系の回分式プロセスでは、ある操作期間内における各制御量間に重要度の差異がしばしば見受けられる。このような

(*) 第6, 7章においてカタサの物理的な意味づけを行なう。

なお、この量が多少感覚的な意味を含んでいることを示すために、ここではあえて“カタサ”と片かなを用いた。

場合、より重要度の高い制御量に重点をおいて制御系を構成せねばならぬことはもちろんである。回分式真空結晶缶の場合、起晶期と育晶期がこれに該当している。ここでは両期における制御量の重要度についての結論だけを示す。(詳細は第4章において述べる。)

① 起晶期では缶内真空度よりも過飽和度の方がより重要な制御量である。

② 育晶期では前半は過飽和度とカタサとは同程度の重要度であるが、中期およびそれ以降ではカタサ > 過飽和度 > 缶内真空度という重要度の順位をつけることができる。

要約

制御対象としての回分式真空結晶缶の準備的な考察を行なった。まず2-1節では本題の回分式真空結晶缶のシーケンスを設定した。その結果、シーケンスを構成する操作期間は、従来の操業方法から考え、図2-1・2に示す6期とすることが適当であることを明示した。すなわち、①準備期、②濃縮期、③起晶期、④育晶期、⑤煎き締め期、⑥排出・洗滌期である。またこれらの各期間における操作内容を述べた。ただしプロセス条件を一定に保持するかあるかは与えられたプログラム通りに規定するような制御(*)を行なわなければならない期間は②～⑤の4期間である。つづく2-2節では、制御を行うべき上記の4期間についての制御量と操作量の数および種類を選定した。ここで、制御量の数のとり方については第3章の結果を前もって使用したが、具体的な種類については検出方法の難易さや物理化学的な有意さなどを検討して、もっとも適当と思われる量を選定した。その結果は表2-2・Iである。さらに、各期間における制御系の構成に大きく影響する制御量の重要度について指摘し、起晶期においては過飽和度が、また育晶期においてはカタサがそれぞれもっとも重要な制御量であることを示した。

(*) すなわち、これまでの調節器による制御の意。

3. 制御系選定のためのプロセス自由度の算定法⁵⁾

3-1 序節

プロセス自由度の意義を制御工学の立場から明確にし、プロセス自由度の概念をプロセス制御へ応用するための準備として、プロセスを連続、半回分、回分という3つの形式に分けて考察を加える。

3-1-1 プロセス自由度の意義について

ある工学系の状態を記述するのに必要な量をプロセス変量と呼んでいる。プロセス変量間には通常その工学系によっていくつかの拘束が内在する。これらの拘束の数を差し引いた残りのプロセス変量の数をプロセス自由度と呼んでおり、この数だけのプロセス変量を系外から規定し、制御すれば、その工学系は完全に整定されたということができる。たとえば図3-1-1(a)に示す工学系を完全に整定することを考えてみる。図に示した流水系のプロセス変量は全部で3個 (w_1, w_2, m) であるが、明らかにこのうち流量 w_1, w_2 と液量 m との間には収支式および水力学的な関係式が成立している。^(*) その結果、この系のプロセス変量間の拘束条件は2個しかないから、求むべきプロセス自由度の数は $3-2=1$ である。したがって、この工学系を完全に整定するためには、1個のプロセス変量を規定すれば十分であり、さらにこれを自動的にこなすには図3-1-1(b)のように制御系を1系統だけ付加すればよいことがわかる。

このようにプロセス自由度の算定は工学系の解析と設計の基礎をなす重要な問題であり、また同時に自動制御系の基本的な設計基準すなわち選ぶべき制御量の個数の決定基準を与えるものである。

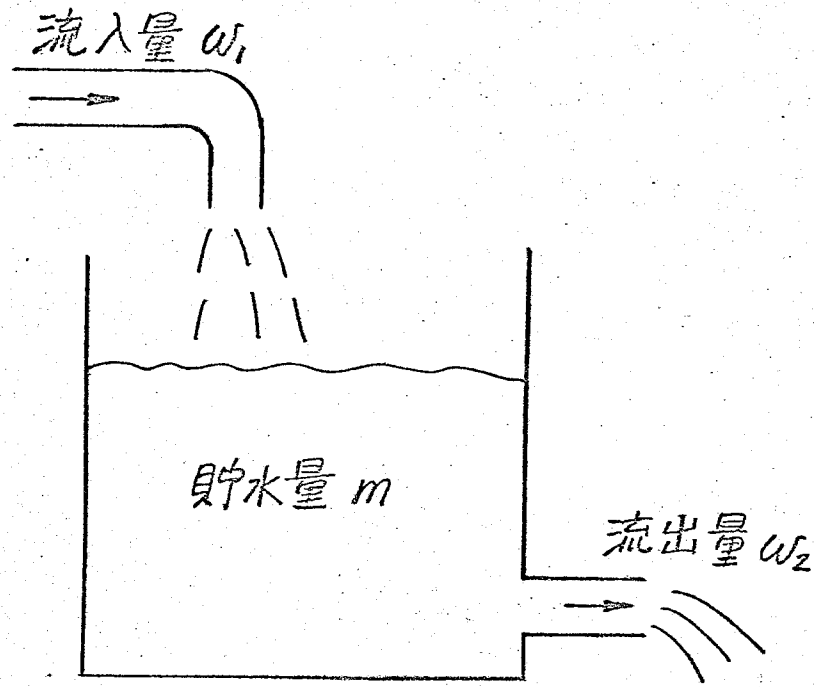
3-1-2 プロセスの熱力学的な検討

操業中の化学プラントなどのプロセスは決して静止した平衡系ではなく、一般に常に流動し変化する動的な非平衡系として取扱

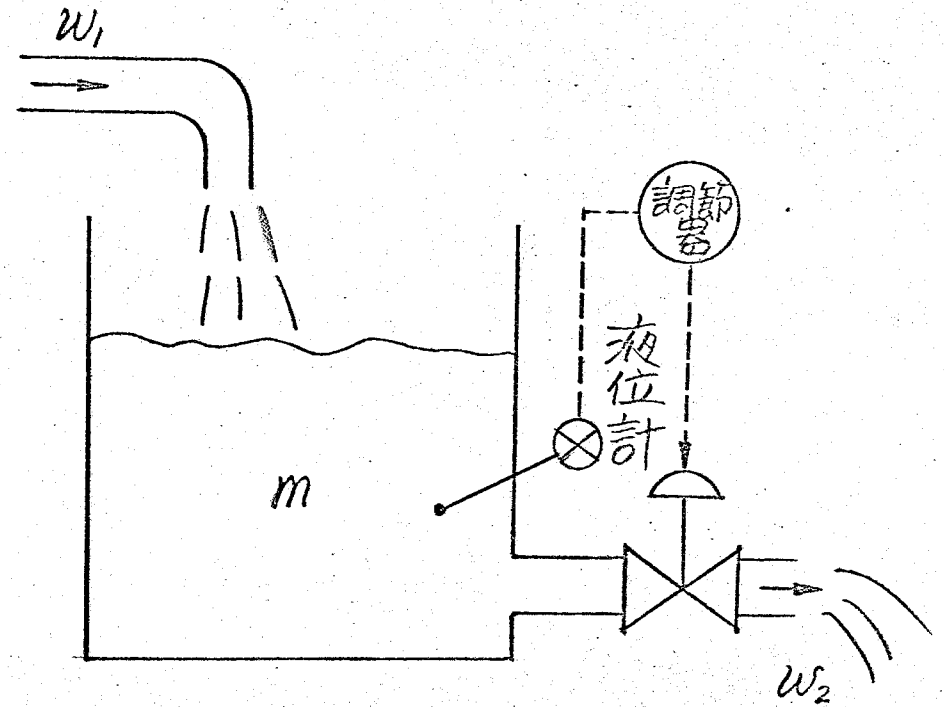
(*) 収支式 : $\frac{dm}{dt} = w_1 - w_2$

水力学的関係式 : $w_2 = k\sqrt{2gm/A}$

(t : 時間, k : 流量係数, g : 重力の加速度, A : タンク断面積)



(a) プロセス自由度 = 1 の系
(自由系), ただし $w_2 \propto m^2$



(b) プロセス自由度 = 0 になった系
(整定系)

例 3-1.1 制御系の付加によりプロセス自由度を減少させる例

う必要がある。したがってプロセス制御で取り扱う制御対象は原理的に非平衡系の立場から記述し考察せねばならないと筆者は考える。そこで本項では次節への導入として、プロセスの状態量を非平衡熱力学的な概念¹⁾と用いて表現し、それによって各種のプロセス形式の特徴を比較する。

(i) プロセスの状態変数、力、流束

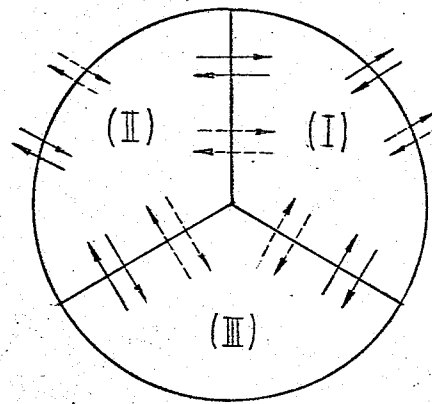
制御対象としてのプロセスを1つのシステムと見なすと、その状態を記述する量すなわち状態変数は示強変数と示量変数に分類できる。前者は圧力、濃度などの強度因子であり、後者は容積、熱量などの容量因子である。示強変数の位置に関する差分すなわち勾配は総称して一般化力と呼ばれている。圧力差、濃度差などがこれであり、これは物質またはエネルギーの移動の"原因"となる量である。一方、示量変数の時間的な差分すなわち広義の流量は総称して一般化流束と呼ばれている。液体の流量、熱の移動速度などがこれであり、これは一般化力にもとづく"結果"に相当している。(以下において一般化力および一般化流束をそれぞれ力および流束と略称することにする。) したがって、非平衡なプロセスを記述するためには、従来の熱力学のように状態変数を単に示強変数と示量変数に限定するよりも、

むしろ力と流束を適宜導入して記述する方が便利であると筆者は考える。

(ii) プロセス変量とプロセス自由度

プロセス変量とプロセス自由度との概念をあらかじめ明確にしておくため、プロセスを図3-1-2のように図式化して考えることにする。この図式化したプロセスは系内において各3相ごとに物質とエネルギーの交換も行なっていると見なすことができる。このプロセスを完全に記述するためには、系内の状態変数すなわち示強変数、示量変数、力、流束を必要にして十分な数だけ測定して求めねばならない。

この数の状態変数はプロセス変量と名づけられている。また、すでに述べたように、系内に存在する拘束条件の数をこのプロセス変量の数から差し引いた数はプロセス自由度と呼ばれている。もしこのプロセス自由度(の数)に相当するプロセス変量を系外から何らかの方法で操作することができれば、その系は整定する。この意味においてプロセス自由度の数は系を完全に制御するために要する制御量の数に





 物質流束
 エネルギー流束

図 3-1-2 図式化されたプロセスの物質流とエネルギー流

算しいうことができる。つぎに、系外から出入りする物質とエネルギーの流束はリワイヤる操作量として用いることができるから、これによって系内の制御量、すなわちプロセス自由度の数だけのプロセス変量、を制御することができることになる。

このように考えていくと、プロセスという制御対象を制御するには、まず、プロセス自由度の数を算定して制御量の数を求め、つぎに求めた制御量を支配できる操作量をプロセス自由度の数だけ定める、という計画手順が明確になった。

(iii) 回分式プロセスの局所的定常性

さて、プロセスを装置工学的に分類し、熱力学的な系の定常性と対応をつけると表3-1-1のようになることが分った。表に示した熱力学的な完全定常性とは、系のすべての状態量が時間的に変わらないう状態を指し、結果的には系内のすべての流束が時間に関係なく一定であるという状態を意味している¹⁾。表3-1-1に示したように、連続プロセスだけが完全定常性をもち得ており、定常的な長時間操業ができる構造になっている。これに反して、回分式プロセスはいずれも完全には定常性をもちないが、近似的には局所的な定常性は存在している。すなわち系内流束の一部だけがほぼ定常的であるような擬定常的な操業は行なえる構造になっているのが普通である。せむなら完全に非定常な系は制御されたりなり限り次第に孤立系に接近し、このようなプロセスは工業的に意味をもちないからである。

(iv) 回分式真空結晶缶の場合

ここで、本論文の回分真空結晶缶の場合について上述の論法を適用してみる。このプロセスは、従来しばしば行なわれているようにこれを平衡系として取扱うことが妥当でない。なぜなら、その一例として、母液の過飽和度をあげるることができる。一般に結晶プラントにおいて、結晶化が正常に行なわれ、結晶粒子の成長が工業的に有意な速度で進行するためには母液の濃度は平衡点の飽和濃度よりかなり高く保たれねばならないのが常である。たとえば第5章で示すように、蔗糖用結晶プラントにおいては、実に過飽和度を1.35近くまで上昇させねばならないことが分っている。また別の一例として母液の激しい沸騰蒸発現象をあげることもできる。これらの例から判断すれば、結晶プロセスが便宜的にも平衡状態として扱いきれない状態にある事が肯定できる。回分式真空結晶缶の

プラトン形式による分類			系外との交換流束 (操業中)			熱力学的 完全定常性
			物質(出)	物質(入)	エネルギー	
プロセス	連続式		○	○	○	○
	回分式	半回分式	○	×	○	△
		純回分式	×	○		
		純回分式	×	×	○	△

(○:有り, △:局所的に有り, X:無し)

表 3-1-1 プロセスの分類

系内は固、液、気、の3相で構成されており、そのプロセス変量のうちで最も重要な力と流速は明らかにそれぞれ母液濃度の過飽和度と結晶成長速度である。また、このプロセスが系外と交換するエネルギーと物質の流れは通常、母液または温水の流入、加熱蒸気の流入、蒸発した蒸気の排出である。これら3つの流れはすべて系内のいくつかのプロセス変量を操作することができ、操作量として取り得る最大の数は3個であり、したがってこのような装置構造から判断して、回分式真空結晶缶の制御量の数は3個であることを暗に想定した構造になっていることが推察できる。さらに、この回分式プラントが部分定常性しかもっていないことは、いわゆる煎き上げという操業手法からも理解することができ、すなわちこのプロセスを3つの制御システムをもって正確に制御し操業しようとも、実際の操業においては煎き上げ操作によって、母液および結晶粒子の容積という2つの示量変数は常に増大してゆくから、系内は完全定常性を欠いていることが明らかである。なお、回分式真空結晶缶についての詳細な議論は3-3節で行なう。

3-2 工学系のプロセス自由度算定法

前節までに示したプロセス自由度の意義と本論文に關係の深い制御工学的な解釈を基礎としながら、本節では筆者の求めた工学系のプロセス自由度算定法について述べる。

3-2.1 従来 of 算定法

プロセス自由度に関する従来の研究はほとんど平衡系に限られていた²⁾。すなわち、示強変量の自由度については有名な Gibbs の相律³⁾があり、示量変量を含めた自由度については Duhem の定理⁴⁾がある。これらの古典的な定理は簡潔で美しい形式で表現されており、これらの応用によって数多くの成果が得られたことは言うまでもない。ところが工学系への応用を試みる際には、その適用に十分な注意を拂わねばならない。

工学系は元来非平衡系であり、また系外とエネルギーのみならず物質をも交換するいわゆる開放系に属する場合も多い。したがって工学系のプロセス自由度の算定に際しては、上述の平衡系に関する定理がそのまま適用できないのが普通である。たとえば、本論文で扱う所の結晶プラントは上述の定理がそのまま適用できない一例である。^(脚註)

(脚註) たとえば Gibbs の相律をそのまま適用できたとして次式の相律の式

$$f = 2 + C - r - \phi \quad (3-2.1)$$

(f : 自由度, C : 物質成分の数, r : 反応の数, ϕ : 相の数)

にもとづいて計算してみる。すなわち結晶プロセスを2成分を含む3相共存の1つの閉鎖系と見なすと、その示強変量に関する自由度は

$$f = 2 + 2 - 0 - 3 = 1$$

となる。結晶プロセスにおいては、母液沸点を規定する缶内真空度と母液の過飽和度という2つの示強変数を制御せねばならないことがすでに明らかにされている。したがって(3-2.1)式の相律をこのプロセスに適用することは適當でないことが分る。

そしてまた、系が安定である限り、系内のいくつかの適当な変量を系外から規定すれば、その系は必ず完全定常状態に落ち着くことは周知である。ゆえに工学系のプロセス自由度は完全定常非平衡系を対象にして考察せねばならないと言える。なお、この線に沿って得た次節の算定式は平衡系に関する従来の算定式およびその工学系への応用算定法などを包含することは次第に明らかになる。

3-2-2 筆者の算定法⁵⁾

筆者が求めた工学系のプロセス自由度算定法を述べる。この算定法は、系が平衡状態の場合のプロセス自由度をも包含している。

以下では工学系を不連続系すなわちいくつかの不連続界面をもつ多相系と見なした。便宜上、同一相内の状態はいたるところ一樣であると仮定する。さて、対象とする工学系のプロセス変数の数を F_p とし拘束条件の数を R_k とすると、求むべきプロセス自由度の数 F_k は、

$$F_k = F_p - R_k, \quad (k=0, 1, 2, \dots) \quad (3-2.2)$$

ここで添字 k は定常状態の次数を表わす。以下の議論において用いた記号は次の通りである。系に含まれる物質成分の数： C 、相の数： ϕ 、異なる相の接している界面の数： ψ 、界面で生起している反応の数： r 、界面を通して移動する流束： J 、力： X 、

このプロセス変数の数 F_p は次のようにして求めることができる。まず、示強変数の数は便宜上平衡系の場合に準じて取扱うと、1つの相については、その温度、圧力、 C 個の成分の各重量分率、合わせて $(2+C)$ 個を定め、 ϕ 個の相について合計すると、 $(2+C)\phi$ (a)

各相の総重量が定めれば系全体の重量が規定されるから、示強変数の個数は、 ϕ (b)

界面を通過するフラックスの数は、1つの界面についてのエントロピー生成速度式をもとに考えれば、熱流、粘性生流、 C 個の成分の拡散流、 r 個の反応過程の和として与えられることが輸送理論的に分っているから、 $(2+C+r)$ 個である。ただし、非平衡系では厳密には、各フラックスの基本因子となる変数の数をとりあげるべきであるが、ここでは(a)式の場合と同様に考えておく。

ゆえに ϕ 個の界面に対して

$$(2+c+r)\phi \quad (c)$$

以上 (a) (b) (c) の和が平衡系の取扱いに準じて導いたプロセス変量の必要十分な数 F_p である。

$$F_p = (3+c)\phi + (2+c+r)\phi \quad (3-2 \cdot 3)$$

これで上記 (3-2-2) 式中の F_p は求めることができた。

つぎに (3-2-2) 式中のもう一つの項、左側の定常状態における拘束条件の数 n_c を求める。この場合も上と同様に平衡系の扱いに準じて導くことにする。

一般に各相内における重量分率の和は、定義によって 1 である。この条件は相の数だけ独立に成り立ちうるから、 n_c の数は

$$\phi \quad (d)$$

また、ある一つの界面を通過する拡散流に関して通常は $\sum_{i=1}^c J_i = 0$ が成立するから、 ϕ 個の界面についての条件式の数は

$$\phi \quad (e)$$

前項 3-2-1 でその必要性を指摘した定常条件は、エントロピー生成極小定理を用いつつ、次の現象方程式をもとにして次のように導くことができる。すなわち、流束 J_i が力 X_i の 1 次結合で表現することができる。すると、次式の現象方程式が成立する。

$$\begin{pmatrix} J_1 \\ J_2 \\ \vdots \\ J_{2+c+r} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} L_{11} & L_{12} \cdots & L_{1,2+c+r} \\ L_{21} & L_{22} \cdots & L_{2,2+c+r} \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ L_{2+c+r,1} & L_{2+c+r,2} & L_{2+c+r,2+c+r} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_1 \\ X_2 \\ \vdots \\ X_{2+c+r} \end{pmatrix}$$

(3-2-4)

(ここで力 X_i は界面をけすむ 2 相の示強変数の勾配で表わすことができる量である。通常、マトリクス (L_{ij}) の各要素は定係数と考えて差支えないと言われている。)

ここでは完全な定常状態とは $(2+c+r)$ 個の流束がすべて定値である状態を意味しているから、この状態を実現するためには必然的にすべての力 X_i ($i=1, 2, \dots, 2+c+r$) はある定値に固定されていなければならない。また左側の定常状態とは左側の流束だけが定値に保たれている状態と定義されている。熱力学によると、左側の定常状態において定値の流束 J_i ($i=1, 2, \dots, n$) 以外の流束 J_i ($i=n+1, \dots, 2+c+r$) はすべて 0 に収斂し、さらに固定した力

X_i ($i = k+1, \dots, 2+c+r$) は固定した力 X_i ($i = 1, 2, \dots, k$) の関数として表現することができる。以上をまとめると、まず 0 に収斂する流束 J_i ($i = k+1, \dots, 2+c+r$) について $(2+c+r-k)$ 個、さらに固定しなかった力および定値の流束 J_i ($i = 1, 2, \dots, k$) がすべて力 X_i ($i = 1, 2, \dots, k$) の関数で与えられるから、その個数 $\{(2+c+r-k) + k - 1\}$ 個。これら両者の合計が一つの界面についての k 次の定常条件の個数となるから、

$(2+c+r-k) + (2+c+r-k) + k - 1 = 3 + 2c + 2r - k$
ゆえに全界面についての総和を求めると

$$\sum_{i=1}^{\psi} (3 + 2c + 2r - k_i) \quad (f)$$

ゆえに k 次の定常状態における拘束条件の数 R_k は (d) (e) (f) の和であると考えられる。

$$\begin{aligned} R_k &= \phi + \psi + \sum_{i=1}^{\psi} (3 + 2c + 2r - k_i) \\ &= \phi + \sum_{i=1}^{\psi} (4 + 2c + 2r - k_i) \end{aligned} \quad (3-2.5)$$

(3-2.3) 式および (3-2.5) 式を (3-2.2) 式に代入すれば k 次の定常状態におけるプロセス自由度 F_k が求まる。

$$\begin{aligned} F_k &= (3+c)\phi + (2+c+r)\psi - \phi - \sum_{i=1}^{\psi} (4 + 2c + 2r - k_i) \\ &= (2+c)\phi - \sum_{i=1}^{\psi} (2+c+r - k_i) \end{aligned} \quad (3-2.6)$$

これが筆者の提案するプロセス自由度の算定式である。

上記 (3-2.6) 式に関し、定常性の次数 k_i は各界面ごとに異なることがありうる。ただし、 k_i の値は当然のことながら、せいぜい流束の数までしかとれない。すなわち (c) を参照して

$$k_i = 0, 1, 2, \dots, 2+c+r, \quad (i = 1, 2, \dots, \psi) \quad (3-2.7)$$

いま完全な定常状態のプロセス自由度を求めるにはすべての次数 k_i を、 $k_i = 2+c+r$, ($i = 1, 2, \dots, \psi$) と置けばよい。ゆえにこの場合のプロセス自由度は

$$F_{2+c+r} = (2+c)\phi \quad (3-2.8)$$

となる。また逆に、系のすべてのプロセス変量になんらの規定も行な

わず放置したとすると、系は過渡状態を経たのち自然に平衡の状態に収斂してゆく。これは0次の定常状態と考えることができるから、(3-2-6)式に $r_i = 0$ ($i = 1, 2, \dots, \phi$) を適用すれば、平衡状態のプロセス自由度 F_0 は

$$F_0 = (2 + C)\phi - (2 + C + r)\phi \quad (3-2-9)$$

と表わすことができる。

3-3 回分式真空結晶缶への応用

前節では筆者のプロセス自由度算定法について述べたが、本節ではこれを回分式真空結晶缶に適用して、そのプロセス自由度の個数を求める。

3-3-1 従来の経験的な説

回分式真空結晶缶に関する自動制御の歴史⁹⁾は他のプロセス制御と同様に比較的新しい。^(*) 1945年 A. L. Webre が発表¹⁰⁾した制御方法によると、制御量として缶内真空度および流動度を採用しており、過飽和度は検出されているだけである。その後、C. J. Flem が開発し実施した制御系では缶内真空度と過飽和度が制御量となっており、この場合流動は検出されているだけである。またこれについて Delden, などの研究が数多く実施され発表されたが、これらの1950年までに開発された制御方法は、いわば半自動制御に属するものであった。この時期までに行なわれた自動制御系を検討するとき、いずれも2つの制御量が採用されており、そのうちの1つは缶内真空度であり、他の1つは過飽和度もしくは流動度であることが分った。その後、これらの経験をもちに^(*) 完全な自動制御系を樹立する機運が高まり、回分式真空結晶缶の自動制御は急速に発展して種々の新しい制御系が試みられ実施されてきた。¹⁰⁾ 現在ひろく実施されているもっとも進歩した制御系は、いずれも缶内真空度、過飽和度、流動度の3つの制御量が採用されている。

これら3つの制御量は通常のプロセス制御で頻出する制御量、たとえば温度、圧力、濃度などにくらべてかなり色合いの異な

(*) この自動制御に加えてシーケンス制御を施し、全操業の完全な自動化を目指した例はようやく最近になって筆者ら⁷⁾の他に2, 3の例⁸⁾があるが、文字通り完全に自動化されたとは言えない。

た制御量であることに気付く。このような特異性は回分式真空結晶缶の制御方式がまた経験的に積み上げられて発展してきた歴史的な事情に由来すると同時に、このプロセスが通常のプロセス制御の方法に「たか」って制御あることが「か」に困難であったかを示す一つの証左であると思われる。制御量の数についても同様に考えられる。すなわち、二つの制御量によって制御しようとした初期の頃のやり方が進展して近年の3つの制御量による自動制御方式が生まれたが、これで十分だという確証は全然ない。それどころか、この3つの制御量による制御方式によって計画的に操業するためには、制御量以外の他の因子や操業方法自体についてもかなりの制約を設けなければならなかったことがすでに分っている。(1) 筆者が回分式真空結晶プロセスを基本的な立場から考察してプロセス自由度についての再検討を行う必要性を感じ、新しいプロセス自由度算定法を提唱した発端は実は上述の事情に起因するものであった。

3-3-2 筆者の算定法の回分式結晶プロセスへの適用

前節で得た筆者の自由度算定法を回分式真空結晶プロセスに適用し、合理的なプロセス自由度、すなわち制御量の個数を算定する。このときもっとも注意すべき点は、第一に定常性の次数、すなわち制御しておきたい流束 Q_i の値、を「か」に定めおくのが妥当であるか、ということである。第二に、数多くのプロセス変量のなかで局所的に許し得る平衡仮定をどの程度に押えておくべきか、ということである。前者は回分式プロセスにおける局所的定常性のとり方を意味し、これはプロセス操業の方法に関係してくる問題である。また、後者は(3-2-6)式で求めた所の計算値と実際にとり得る値との差がどの程度許されるかという事を意味し、これは主として、プロセス内での状態と反応速度の大きさとは関係する問題である。

回分式真空結晶缶の操業期間は、すでに前節で述べたように、準備と排出の期間を除けば濃縮期、結晶期、育晶期、煎き締め期に分けて考えることができる。しかし、これら4つの期間を物理化学的な単位プロセスの観点から見れば、あきらかに2つの系に分類することができる。1つは濃縮期における濃縮プロセスで、他の1つは起

晶期以降を包含する結晶化プロセスである。このことはとりも直さず、固分式結晶法においては、種入れを境としてプロセスが物理化学的に異った系に移行することを意味している。そこでこの二つの異なったプロセスの状態を図3-3-1にモデル化し、(3-2-6)式を用いて各場合に対するプロセス自由度 F_R を以下のように計算した。

(i) 濃縮期への適用

濃縮プロセスは2成分2相系であるから、(3-2-6)式を用いると、

$$C=2, \quad \phi=2, \quad r=0, \quad \psi=1$$

$$\therefore F_R = (2+2) \times 2 - (2+2+0-r_0)$$

$$= 4 + r_0$$

(3-3-1)

これが濃縮プロセスの自由度である。ここで問題となる r_0 は定常性の次数で、もしプロセスに定常性をもたせようとするならば、操業の定常性の度合いに応じて $r_0 = 1, 2, 3, 4$ のいずれかの値を与えるべきである。(3-2-7)式参照のこと。)ところが濃縮期における操業目的は前章で述べたように単に仕込んだ一定量の母液を起晶点まで濃縮することにあるから、このプロセスの流束については何ら定常性は要求されないのである。ゆえに(3-3-1)式について $r_0 = 0$ とおいて差支えない。ゆえに濃縮期のプロセス自由度は $F = 4$ である。

つぎに、この濃縮プロセスの操業状態をもとにして考えると、プロセス変数の間に次のような3つの関係を仮定することが許される。

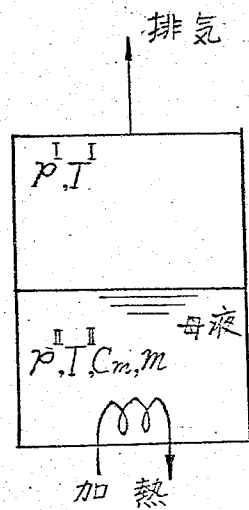
$$P^I = P^{II} \quad ; \quad \text{両相の圧力は平衡している。}$$

$$T^I = f(P^{II}, C_m) \quad ; \quad \text{沸騰している液相の温度は圧力と濃度の関数である。}$$

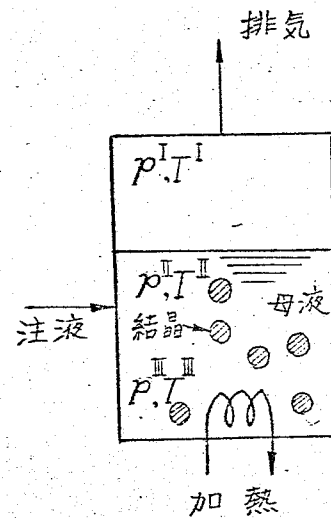
$$m \cdot C_m = \text{const} \quad ; \quad \text{液相中の溶質成分の重量は不変である。}$$

この3つの関係式はプロセスの実際の操業下において許される条件であるから、(3-3-1)式から3だけ減じた値がこのプロセスの条件つきの自由度である。ゆえに上述の条件を導入して(3-3-1)式を求めれば

$$F_0 = 4 + 0 - 3 = 1$$



(a) 濃縮プロセス



(b) 結晶化プロセス

(p : 圧力 T : 温度 C_m : 濃度 m : 重量)

図 3-3-7 回分式真空結晶プロセスに含まれる
2つの単位プロセス.

これか回分式真空結晶缶の濃縮期における条件つきのプロセス自由度である。ただし、この値は流束にフリの定常性を全く要求しなくなりときのものである。操業目的から考えれば、この濃縮期には何ら定常性は必要でなく、むしろこれ以上制御量を増やすと、たとえば蒸発速度の定常性などを附加すると、却って濃縮時間を延長させる結果になるから、従来の単一の制御量による方法で十分である、と筆者は考える。

(ii) 起晶期以後への適用

起晶期以降のプロセスを一括して結晶化プロセスとする。このプロセスを図3-2-2(b)にモデル化した。さて、このプロセスに(3-2-6)式を適用し、吟味する。

結晶化プロセスは2成分3相系で、界面の数は2である。(3-2-6)式を適用すると、理論的プロセス自由度は、

$$C = 2, \quad \phi = 3 \quad r = 0, \quad \psi = 2$$

$$\begin{aligned} \therefore F_k &= (2+2) \times 3 - \sum_{i=1}^2 (2+2 - k_i) \\ &= 4 + k_1 + k_2 \end{aligned} \quad (3-3-2)$$

この(3-3-2)式に含まれる k_1, k_2 の値はそれぞれ気相-液相界面と、液相-固相界面における定常流束の数である。これらの数値を定めるためには、それぞれの界面における流束を各操業期間における方法と目的に沿って考えねばならない。^(*)結晶化プロセスにおける操業は、結晶の成長速度を適当な値に保持し、母液の温度をある限定値以下に抑えるという原則によって操業するのが常である。これらの操業原則を各界面における定常流束のとり方、すなわち、制御すべき流束の選択、に照らして考えると、直ちに次の結論を得る。すなわち、前者の操業原則からは液相から固相への溶質流束(晶析流束)、

(*) 回分式真空結晶缶における結晶化プロセスはすでに分類したように起晶期、育晶期、煎き締め期の3期間から成り立っているが、このうち煎き締め期は単に落糖準備の操作期間に過ぎないからここでは省略して考える。

また後者のそれぞれからは液相から気相への溶媒流束(蒸発流束)がそれぞれ定常的に制御されねばならないという結論を得る。ゆえに $k_1 = k_2 = 1$ がこの場合の操業原則に従った定常流束の次数である。よって (3-3-2) 式より

$$F_{1,1} = 6$$

を得る。これが結晶化プロセスにおけるプロセス自由度の数である。

さて、濃縮プロセスの場合と同様に、操業状態から判断して、結晶化プロセス変量間に以下に示す3つの関係を仮定することが許される。^(*)

$$\left. \begin{aligned} p^I &= p^{II} \\ p^{II} &= p^{III} \\ T^{II} &= f(p^{II}, C_m) \end{aligned} \right\}; \text{系内の圧力は全相にわたって一様である。}$$

沸騰している液相の温度は圧力と濃度の関数である。

この部分的な平衡仮定にもとづく3つの関係によつて、プロセス自由度は (3-3-2) 式の値より3だけ減少するから、工学的に有意な条件付きのプロセス自由度の数は計算値から3を差し引いて $F_{1,1} = 3$ であることが分った。

さらに、この結果の吟味を行なうならば、起晶期前半の特殊な状況を考慮する必要がある。すなわち、種入れ直後の結晶化プロセスは固相分重量が極めて少なく、しかもその成長速度は種晶の特異的な性質によつてこれを制御することがむづかしいことが分っている。(第5章参照のこと) このような場合は液相-固相間の流束に定常性を加えることは事実上困難である。ゆえに、結晶化プロセスの起晶期前半だけについては上述の結論通りの制御量は取ることはむづかしく、 $k_1 = 0$, $k_2 = 1$ すなわちせいぜい $F_{0,1} = 2$ とすべきである。

(*) ただし、これ以上の関係を設定することはできない。たとえば、液相が固相に接触しているからその濃度は飽和濃度である、という部分的平衡仮定を設けたとすると、晶析現象が当然見られなくなり、したがって、これは許されぬ仮定である。

(iii) まとめ

本節で得た結論を表3-3-1にまとめた。ここで筆者の算定法と操業条件によって求めた条件つき制御量の数は、回分式真空結晶缶のもっとも一般的と考えられる操業条件を考慮して導いたものであるから、もしこれ以外の別の方法によって操業される場合があれば表3-3-1の数値はおのずから異なったものになろう。また回分式真空結晶缶操業の重要な期間は育晶期であるから、この期間における制御量かもっとも多いことは肯定できる。

筆者の得た条件つきプロセス自由度、すなわち制御量の数を本節3-3-1項で述べた従来の制御量の数と比較すると、最近のもっとも進歩した制御系の場合と一致していることが分った。このことによつて、従来の最新式の制御系が採用してきた制御量の数に対して、条件付きではあるが、その妥当性の裏付けを行なうことができた。換言すれば、従来の自動制御系は、表3-3-1に示した制約条件さえ満足する操業を行なう限り、制御量の数は十分である、ということが出来る。

表 3-3-1 筆者の算定法による制御量の個数

プロセス	操作期間	筆者の算定式 から求めた 制御量の個数	条件付きの 制御量の個数	操業の方法と目的から付した追加条件	
				状態変数 (プロセス変数)	定常流束
濃縮 プロセス	濃縮期	4	1	1. $p^I = p^II$ 2. $T^II = f(p^II, C_m)$ 3. 溶質の総量は不変	$k_0 = 0$: 定常性なし
結晶化 プロセス	起晶期 (前半)	6	2	1. $p^I = p^II = p^III$ 2. $T^II = f(p^II, C_m)$	$k_1 = 1$: 蒸発流束 $k_2 = 0$: 定常性なし
	起晶期から (後半) 育晶期まで	6	3	1. $p^I = p^II = p^III$ 2. $T^II = f(p^II, C_m)$	$k_1 = 1$: 蒸発流束 $k_2 = 1$: 晶析流束

P : 圧力 T : 温度 C_m : 濃度
 添字 I: 気相 II: 液相 III: 固相
 記号 f は関数の意

要約

制御量の個数を決定するプロセス自由度について筆者の算定法を示し、回分式真空結晶缶の場合に適用して実用性のある制御量の数を求めた。この筆者の算定法は平衡系の場合に準じた取扱いのもとに導いたものであるが結晶プロセス以外の多くの非平衡系のプロセス自由度算定に応用できると考えられる。

3-1節では、プロセス自由度の算定がプロセス制御における制御量の個数、ひいては自動制御系の設計法にまで重要な意義をもつことを述べた。また、プロセス形式を回分式、半回分式、および連続式とに分け、プロセス自由度がプロセスの定常性の大小によって異なる点に着目してこれらのプロセスの比較を行なった。局所的定常性という概念を用いて、回分式および半回分式プロセスのプロセス自由度が擬定常性の次数によって支配されることを論じた。

3-2節では、Gibbsの相律に基礎をおく従来のプロセス自由度算定式は工学プロセスに厳密には適用できないことを指摘し、その一つの原因が熱力学が平衡仮定にあることを指摘した。しかしながら完全に非平衡な系のプロセス自由度を算出することは困難であるので、筆者は非定常系に対して便宜上、平衡系に準じた扱いを用いて導いた。すなわち、

$$F_k = (2 + C)\phi - \sum_{i=1}^{\psi} (2 + C + r - R_i) \quad (3-2.6)$$

ただし、 F_k ; k 次の定常状態におけるプロセス自由度、 C ; 成分の数、 ϕ ; 相の数、 r , 化学反応の数、 R_i ; i 界面における定常流束の数、 ψ ; 界面の数、である。もし、プロセスが連続プロセスのように完全定常性が要求される場合には、そのプロセス自由度は

$$F_{2+C+r} = (2 + C)\phi, \quad (3-2.8)$$

逆に、全く定常性を要求せず平衡状態のプロセス自由度を求めるには

$$F_0 = (2 + C)\phi - (2 + C + r)\psi \quad (3-2.9)$$

を用いればよいことを示した。

3-3節ではこの筆者の算定法を回分式真空結晶缶に適用し、各操作期間ごとにプロセス自由度を計算した。その結果、表3-3.1で与えた制約条件を満たすような操業を行なう限り従来の最新

の制御方法、すなわち最大限3つの制御量を用いる方法は合理的であるという結果を導びくことができ、これによって回分式真空結晶缶の制御系設計の一つの重要な基礎を得ることができた。

4. 回分式真空結晶缶の特性解析⁽¹⁶⁾

4-1 濃縮期の特性解析

本節では回分式真空結晶缶運転の最初の操作期である濃縮期における定常特性と動特性を、フロント操業および制御の立場から解析する。

濃縮期では、今日用いられている結晶缶の入出力は図4-4.1のとおりである。この期間における操業の要点は、注入したばかりの未飽和濃度の母液を蒸気加熱によって濃縮し、規定の過飽和度まで濃度も高めの点にある。このとき、濃縮速度はとくに問題とはならないが、母液の温度については、過飽和度に対する外乱の抑制と過熱による母液の変質および着色を避けるため、つねに母液温度を一定に保つ必要がある。そこで缶内真空度 p_s を一定に保持することによって、沸騰中の母液の温度 θ_{m2} を缶内真空度に対応する沸点に維持し、その状態で母液の過飽和度 Σ を起晶点まで高める操作を行う。したがって真空度 p_s は手動、自動にかかわらず一定に制御せねばならないのに対し、過飽和度 Σ はとこよりプログラム制御する必要はない。よって、濃縮期における特性として、筆者は缶内真空度 p_s の動特性と定常特性、それに過飽和度 Σ の時間的変化を求めた。

本節は次の4項目からなっている。すなわち、4-1.1では排気システムすなわち排気ブースターとレートの混合凝縮器と真空ポンプとの直列システムが缶内真空度の操作要素としていかに特性をもっているかについての筆者の研究結果を述べた。この排気システムの特性は濃縮期以後のすべての操作期についてもそのまゝ成立する共通の特性である。4-1.2では濃縮期の特性を解析するための基礎式を提示し、つづく4-1.3では排気システムという操作要素によって缶内真空度が動的、定常的にいかに応答を示すかを取扱った。また同時に、外気吸入用のリーク弁を操作要素としたときの応答についても論じた。4-1.4では沸騰蒸発中の母液の温度が缶内真空度の変動に対して示す動的な応答とその過飽和度への影響について論じ、沸騰係数という新しい概念を導入して基礎的解析を試みた。この結果、圧力操作を行なったときの一般的な沸騰プロセスの温度動特性を明らかにすることができた。最後に、4-1.5では過飽和度が濃縮過程に沿って変化する特性を解析し、次章で述べる実験結果に合致する濃縮速度式を導くことができた。

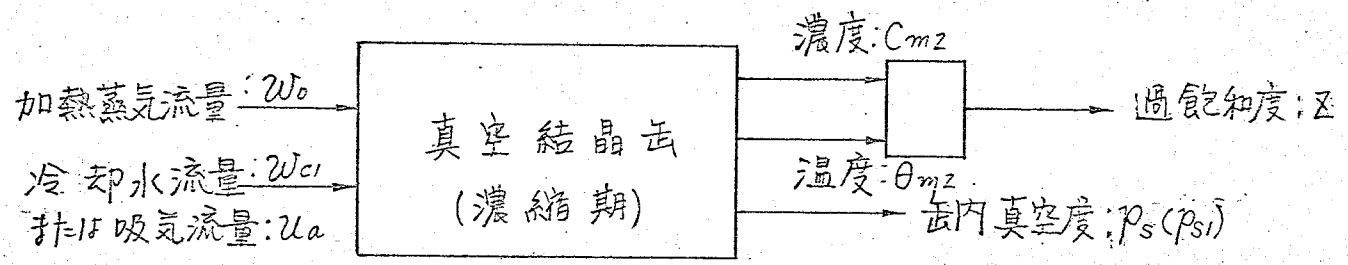


図 4-1-1 濃縮期における入出力

4-1-1 補助機器としての排気系統の操作と特性

真空結晶缶に附帯する排気設備としてもっとも広く使用されている大気脚つき混合凝縮器 (barometric mixing condenser) と容積形真空ポンプとの直列排気系統について考察する。

混合凝縮器は、母液から蒸発した大量の蒸気を冷却水中へ凝縮させて冷却水とともに排出するものであるから、一種の蒸気排出ポンプであり、また真空ポンプに対するブースターの役目も兼ねている。一方、混合凝縮器に結合している真空ポンプは、混合凝縮器で凝縮しきれなかった蒸気、および母液から発生した不凝縮性ガス、缶外からの漏洩空気などを排出する役目をしている。

排気系統の真空結晶缶内での制御工学的役割は、真空度を所定の目標値に保持する操作要素としてである。すなわち混合凝縮器では、それへの冷却水流量を加減することによりその排気速度を変化できるから、一般には冷却水流量 W_c が直接の操作量としてとられている。^(*)

以下図4-1-2の典型的な排気系統の定常操業中の特性を求める。記号については図4-1-2を参照されたい。

まず結晶缶全体の定常収支式を求める。

簡単のために缶内は集中定常系であると仮定する。

缶内の蒸気空間における物質収支は、蒸発速度 j_{mv} と排気速度 W_{s1} とがひとしいから

$$j_{mv} = W_{s1} \quad (4-1-1)$$

蒸発速度は、加熱速度 Q と母液の蒸発潜熱 r_{m2} とから

$$j_{mv} = \frac{Q}{r_{m2}} \quad (4-1-2)$$

混合凝縮器に関する熱収支式は、冷却水が混合凝縮器内で蒸気と完全混合すると仮定すると

(*) ここで、真空ポンプの排気速度を直接の操作量として採用することは、真空ポンプが受け持つ排気容量が混合凝縮器のそれに比較してごく小さく、単に混合凝縮器の背圧ポンプとしての働きをするだけであるから、適当ではないのである。

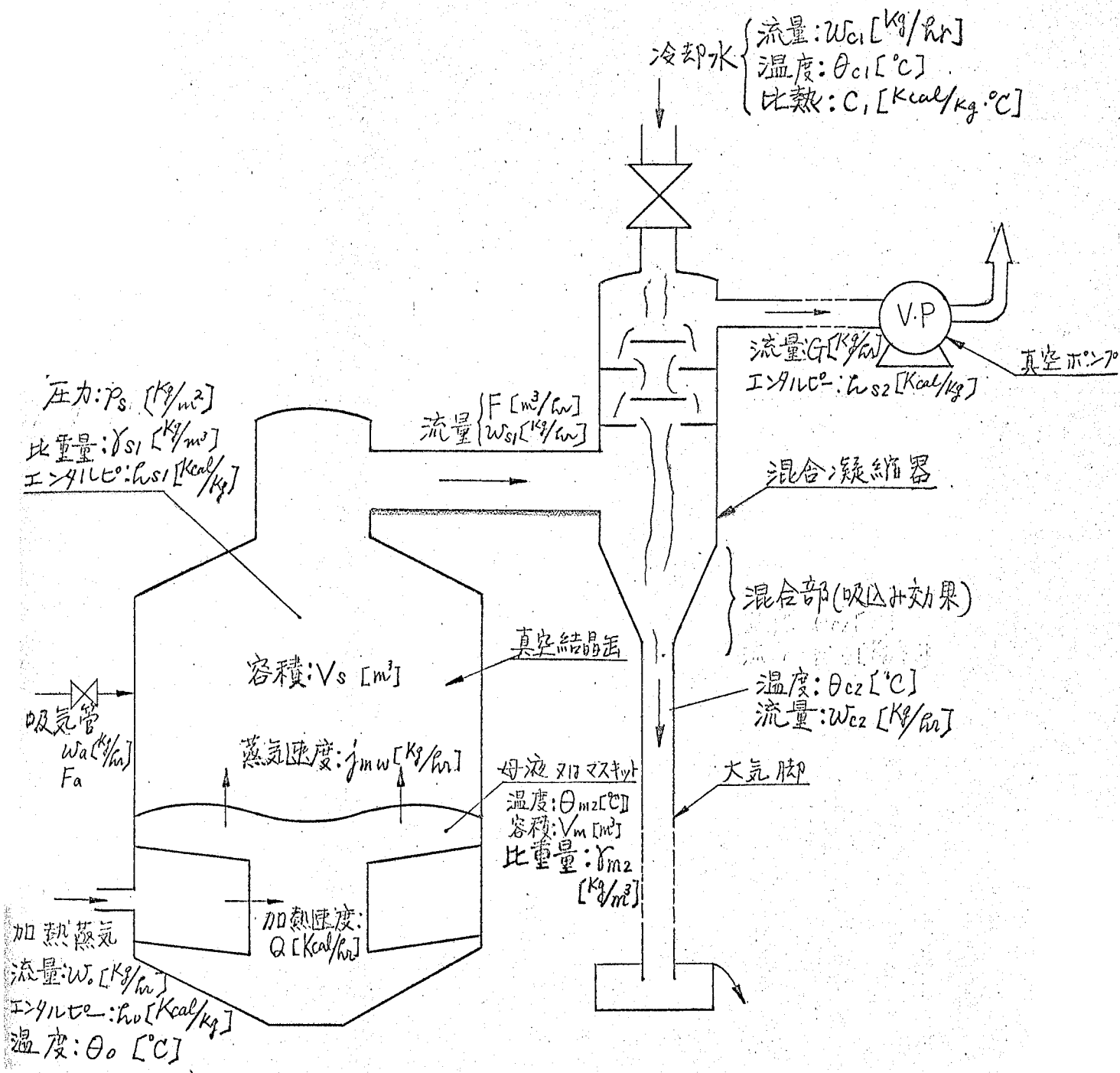


図 4-12 真空結晶法と排気系統の記号

$$W_{s1}h_{s1} - Gh_{s2} = (W_{c2}\theta_{c2} - W_{c1}\theta_{c1})C_1$$

ここで、図 4-1.2 において成立している $W_{c2} = W_{c1} + W_s - G$ の関係式を代入すると

$$W_{s1}(h_{s1} - C_1\theta_{c2}) - G(h_{s2} - C_1\theta_{c1}) = W_{c1}C_1(\theta_{c2} - \theta_{c1})$$

真空ポンプの排気速度 G は一般に混合凝縮器の排気速度 W_{s1} に対して無視できるほど小さく設計されているから左辺第 2 項は省略できる。ゆえに

$$W_{s1}(h_{s1} - C_1\theta_{c2}) = W_{c1}C_1(\theta_{c2} - \theta_{c1}) \quad (4-1.3)$$

加熱速度 Q と加熱蒸気流量 W_0 との関係は、MacDonald らの経験式⁽¹⁾ を採用すると

$$Q = W_0(h_0 - 0.6C_1\theta_0 - 0.4C_1\theta_{m2}) \quad (4-1.4)$$

と作る。以上の 4 式 (4-1.1) ~ (4-1.4) から筆者は次の関係式を導いた。

$$W_{c1} = \frac{(h_{s1} - C_1\theta_{c2})(h_0 - 0.6C_1\theta_0 - 0.4C_1\theta_{m2})}{C_1\gamma_{m2}(\theta_{c2} - \theta_{c1})} W_0 \quad (4-1.5)$$

(h_{s1} , h_0 はそれぞれ蒸発蒸気, 加熱蒸気のエンタルピー, θ_{c1} , θ_{c2} , θ_{m2} , θ_0 はそれぞれ冷却水入口, 冷却水出口, 母液, 加熱蒸気の温度, γ_{m2} は母液の蒸発潜熱)

この関係式は濃縮期における 2 つの操作量, すなわち冷却水流量 W_{c1} と加熱蒸気 W_0 の間の定常関係を規定するもので, 混合凝縮器の設計だけでなく真空結晶缶の操業にとっても有用な関係式である。なおこの (4-1.5) 式は筆者の実験結果によって確かめることができている。(5-1.2(i) 参照のこと)

次に混合凝縮器の冷却水流量 W_{c1} に対する排気速度 W_{s1} の動特性を求めらる。真空結晶缶に附帯する混合凝縮器には多くの形式のものが実用されているが,⁽²⁾ それに関する工学的な研究は皆無に近く, 二三の実用的規模のものに対する研究⁽³⁾ と Hausbrand の発表した設計基準⁽⁴⁾ 以外に参考とすべき資料はない。このことは混合凝縮器内における凝縮機構の複雑さを物語っている。

さて混合凝縮器を集中定数系と見做し, また器内で冷却水が蒸気と完全に混合していると仮定する。そのときは排気速度 W_s は (4-1.3) 式から

$$W_{s1} = \frac{W_{c1}C_1(\theta_{c2} - \theta_{c1})}{h_{s1} - C_1\theta_{c2}} \approx \frac{W_{c1}C_1(\theta_{c2} - \theta_{c1})}{\gamma_{s1}} \quad (4-1.6)$$

また、冷却水との混合凝縮速度は Marcellin の式を用いて

$$W_{s1} = K_c (p_{s1} - p_{c2}) \quad (4-1.7)$$

ここで、 K_c は接触面積を含めた蒸気の凝縮速度係数で、 p_{c2} は器内の冷却水温度に対する飽和圧力である。以上の両式を用いて排気速度 W_{s1} の応答式を算出することができる。両式を定常値近傍の微小変域内での関係式に書き直して、 θ_{c2} の項を消去すると

$$\left(k_{po} \cdot r_{s1} + \frac{\bar{W}_{c1}}{K_c} \right) \Delta W_{s1} = k_{po} (\bar{\theta}_{c2} - \bar{\theta}_{c1}) \Delta W_{c1} + \bar{W}_{c1} \Delta p_{s1} \quad (4-1.8)$$

ただし、式の誘導にあたって潜熱 r_{s1} は一定とみられ、定常値には“-”を附した。

また (4-1.7) 式の p_{c2} に関しては $\Delta p_{c2} = k_{po} \Delta \theta_{c2}$ の関係を用いた。

(4-1.8) 式にみられるように、もし (4-1.6), (4-1.7) 式が成立するならば、排気速度 W_{s1} は冷却水流量 W_{c1} と吸入蒸気圧 p_{s1} の入力にほぼ比例して応答するはずである。ところが筆者が行なった次章の実験結果によれば、冷却水流量 W_{c1} に対する排気速度 W_{s1} の応答はほぼ比例性を示したが再現性と安定性に乏しかった。検討(次章参照)の末、この原因の一つが混合凝縮係数 K_c にあることが判明した。表 4-4.1 および次章の表 5-1.5 は (4-1.7) 式によって求めた K_c の実験値である。この表でみられるように、混合凝縮器内の冷却水の流況にはかなりの動揺があり、しかも再現性のすぐれない流況方をしているものと思われる。また別の原因は混合凝縮器の構造自体にあるものと推定せざるを得ない。^(*) すなわち、ほとんどの混合凝縮器は、普通蒸気の排気効率を高めるために器本体の底部を円錐状に設計して、あたかもエジェクター混合室のような働きを附加しているから、混合凝縮器の動作は単に蒸気の凝縮作用だけでなくかなりの流体力学的な吸込み作用をも兼備していることが推定される。また、工場内では冷却水の供給が他の真空結晶缶と共通のヘッダーから行なわれる場合が多いが、このような場合はヘッダーからの流量配分が別の枝管での弁閉閉によって変動を受けやすいから、外乱としての冷却水流量の変化が重畳され、上述の傾向が余計に助長されることになる。

ゆえに筆者は、混合凝縮器を操作部とするのは不適當であるという結論に達し、4-1.3 で述べる外気吸入による缶内真空度の制御方式を提議するに至った。

(*) 但し実験からは定量的に証明できなかった。

表 4-1-1 濃縮期における混合凝縮係数 K_c の実験値

操業 開始後 の時刻 [分]	冷却水 流量 w_{c1} [kg/hr]	冷却水 温度差 $\theta_{c2} - \theta_{c1}$ [°C]	缶内真空度 p_s [mmHg]	冷却水 出口温度 θ_{c2} [°C]	凝縮潜熱 $h_{s1} - h_{c2}$ [$\frac{\text{kcal}}{\text{kg}}$]	混合凝縮 係数 K_c [$\frac{\text{kg}}{\text{hr} \cdot \text{mmHg}}$]
20	2.29×10^5	13.0	75	41.5	575.5	3.6×10^2
30	2.35×10^5	13.5	66	42.0	573.0	7.1×10^2
38	2.17×10^5	14.5	68	43.0	573.0	9.1×10^2

4-1.2 基礎式

回分式真空結晶缶の濃縮期における特性を導くために必要な基礎式を求めよう。

まず、母液の熱収支は、母液の全熱量変化が加熱速度 Q と蒸発熱速度 j_{mv} の差で定まるから、

$$C_m \frac{d\theta_m}{dt} = Q - j_{mv} \quad (4-1.9)$$

蒸気空間部については、蒸発速度 j_{mv} と排気速度 W_s の差が缶内真空度 p_s を決めるから、そのエネルギー収支式は

$$V_s \frac{dp_s}{dt} = j_{mv} V_{m2} p_{m2} - W_s V_{s1} p_{s1} \quad (4-1.10)$$

母液の過飽和度 Z は、母液の濃度分率 \widetilde{C}_{m2} とその温度に対する飽和濃度分率 \widetilde{C}_{m2}^0 との比 $\widetilde{C}_{m2} / \widetilde{C}_{m2}^0$ で定義されているから、ここでは濃度 C_{m2} および飽和濃度 C_{m2}^0 で表現すると

$$Z = \frac{\widetilde{C}_{m2}}{\widetilde{C}_{m2}^0} = \frac{C_{m2}(1-C_{m2})}{C_{m2}^0(1-C_{m2})} \quad (4-1.11)$$

つぎに、母液の濃縮過程、すなわち缶外から新しい母液や温水が注入されたいときの濃縮速度は、母液の蒸発 (j_{mv}) によって溶媒重量が減少するだけであるから、

$$\frac{d}{dt} [V_m \gamma_{m2}] = -j_{mv} \quad (4-1.12)$$

また、溶質成分の重量には変化はないから

$$\frac{d}{dt} [V_m \gamma_{m2} C_{m2}] = 0 \quad (4-1.13)$$

が成立する。

蒸発速度 j_{mv} は、母液が沸騰しているから、主として加熱速度 Q だけで左右されると考えられる。そこで母液の蒸発潜熱を r_{m2} とすると

$$j_{mv} = \frac{Q}{r_{m2}} \quad (4-1.14)$$

以上が濃縮期における基礎式である。以下にこれらを用いて濃縮期の制御量としての缶内真空度、および過飽和度の特性を解析する。

4-1.3 缶内真空度の動特性

本項では真空結晶缶の濃縮期における重要な制御量である缶内真空度の動特性を述べる。缶内真空度制御の操作量として、混合凝縮器の冷却水流量 W_{c1} とリーク弁による外気吸入速度 W_a の二つの場合が考えられる。以下ではそれらの各々に対する動特性について述べる。

缶内真空度を制御する主な目的は母液の温度制御にあると思われる。すなわち、真空結晶缶における母液あるいは結晶分を含んだマスクットは、常に沸騰状態にあるから、その温度を支配する要因は缶内真空度である。したがって、缶内真空度の制御はとりも直さず母液またはマスクットの沸点制御である。

濃縮期では真空結晶缶内の母液の容量および蒸気空間の容積はほとんど一定である。^(*) また母液から発生した蒸気は過熱状態にあると考えられる。以下、図4-1.3の記号を用いる。

まず混合凝縮器の冷却水流量 W_{c1} に対する缶内真空度 p_s の動特性を導く。

まず母液の熱収支式は(4-1.9)式で表わすことができるから、これに次の(4-1.28)式を用いて蒸発熱速度 j_{m2} を書き直すと、

$$C_m \frac{d\theta_{m2}}{dt} = Q \left\{ 1 - e^{-\beta(\theta_{m2} - \theta_{m2}^*)} \right\} \quad (4-1.15)$$

ただし、 θ_{m2}^* は真空度 p_{s1} に対応する母液の飽和温度であり、 β は母液の物性と缶の形状に依存する定数である。

つぎに、蒸気空間部に関するエネルギー収支式は、(4-1.10)式で示した通りである。ここで、蒸発速度 j_{m2} については基礎式(4-1.14)式を用い、また次章で述べる実験の結果、発生した蒸気はやはり過熱状態に陥っていることが分っているから完全ガスの気体状態式を用いて

$$V_{m2} p_{m2} = \rho_s (\theta_{m2} + 273)$$

と書く。また、混合凝縮器の排気容積速度 ($F = W_{s1} V_{s1}$) は冷却水流量 W_{c1} に比例すると考えられる。ゆえに(4-1.10)式を

$$V_s \frac{dp_s}{dt} = \frac{Q \cdot \rho_s (\theta_{m2} + 273)}{\rho_{m2}} - p_s F \quad (4-1.16)$$

と書きかえる。

(4-1.15)式および(4-1.16)式がこの場合の基礎式である。この両式を用いて缶内真空度の動特性を導くため、両式を定常点附近の微小変域内で線形化し、実際の装置規模の平均的な数値を念頭において妥当な省略算を

^{*} 厳密には濃縮のため蒸発させた水分だけ母液容量は減少するが、これは無視できるくらい小さい。次章 図5-1.9-② 参照のこと。

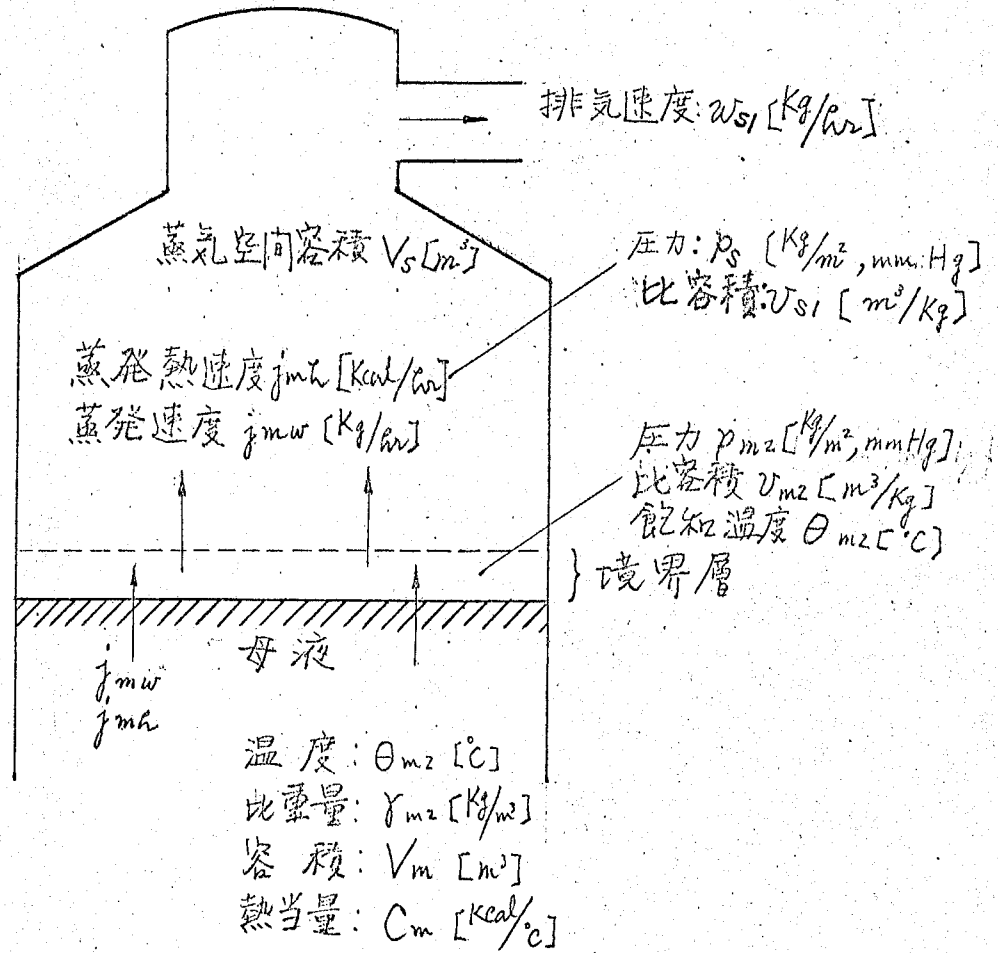


図 4-1.3 結晶釜内の記号

行なった結果、次の伝達関数が得られた。(式の誘導は附録(4-1)を参照のこと)

$$\Delta \theta_{m2} = \frac{-k_b \cdot k_{ep}}{k_a \left(1 + \frac{\tau_0}{k_a} s\right)} \cdot \Delta W_{c1} \quad (4-1.17)$$

$$\Delta p_s = \frac{-k_b (1 + \tau_0 s)}{k_a \left(1 + \frac{\tau_0}{k_a} s\right)} \cdot \Delta W_{c1} \quad (4-1.18)$$

ただし、ここで

$$\left. \begin{aligned} \tau_0 &= C_m / \bar{Q} \beta e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2} - \bar{\theta}_{m2})} \\ k_a &= 1 - \frac{k_{ep} \bar{Q} \cdot k_s}{F \cdot r_{m2}} \\ k_b &= r_{m2} \bar{p}_{s1} \cdot k_{cs} / F \\ k_{ep} &= \Delta \theta_{m2} / \Delta p_s \end{aligned} \right\} (4-1.19)$$

(4-1.17), (4-1.18)式が求める伝達関数である。ただしこれらの伝達関数は附録(4-1)に示したように、いずれも蒸気空間の容積にもとづく排気おくれの項が無視できることを用いて導いた。

混合凝縮器の冷却水流量の変化に対する母液温度の応答は(4-1.17)式に見られるように1次おくれであることが分ったが、缶内真空度 p_{s1} の応答は(4-1.18)式に見られるように位相進みを示している。この応答は、(4-1.19)式では常に $k_a < 1$ であることから結論できる。

さて、次に外気の吸入に対する缶内真空度の動特性を述べる。これは具体的には、缶体壁にとりつけられたリーク弁の閉閉によって、缶内真空度を調節しようとするときの動特性に相当している。この方法が可能のためには、もちろん排気系統の能力が充分大きくなければならぬ。通常の真空結晶装置には、準備期における排気作業を短時間で終わらせるため、排気容量の大きい真空ポンプが設置されているから、ここで問題とする外気の吸入に対して排気の支障を来すことはあり得ないと考えよう。

まず吸気に対する缶内真空度の特性を求める。真空度 p_s は蒸気分圧 p_{s1} と空気分圧 p_a との和で与えられるから

$$p_s = p_{s1} + p_a \quad (4-1.20)$$

また、缶内真空度の特性を示す基礎式は(4-1.10)式に吸気にもとづく項

$(W_a v_a p_a)$ を加えて

$$V_s \frac{dp_s}{dt} = -F p_{s1} + j_{mv} v_{s1} p_{s1} + W_a v_a p_a \quad (4-1.21)$$

ここで F は排気系統の容積排気速度 [m^3/hr], v_a は空気の比重量 [m^3/kg], その他の記号は図4-1.2に示した通りである。

さて母液からの蒸発速度 j_{mv} は、厳密には吸気量の変動の影響を受けるが、吸気量は缶内空間中の蒸気量にくらべてむしろにすくないから、この影響は無視できるくらい小さいと考えられる。したがって、吸気速度の変動に伴う蒸気空間内の変化は、空気分圧 p_a および全圧 p_s の項にだけ及ぶと考える。そこで(4-1.21)式を微小量変動について線形化する。ただし、右辺第2項は上述の理由によって不変と考え、また吸気速度 W_a を容積速度で表現するため、 $W_a v_a = \bar{u}_a$ と置く。

$$V_s S \Delta p_s = -F \Delta p_s + \bar{p}_a \Delta u_a + \bar{u}_a \Delta p_a$$

(4-1.20)式より、蒸気分圧 p_{s1} の変化は無視できるから、

$$\Delta p_s = \Delta p_a$$

ゆえに

$$\Delta p_s = \frac{\frac{-\bar{p}_a}{F - \bar{u}_a}}{1 + \frac{V_s}{F - \bar{u}_a} \cdot S} \cdot \Delta u_a \quad (4-1.22)$$

これが吸気速度の微小変化 Δu_a に対する缶内真空度 Δp_s の動特性を表わす伝達関数である。時定数 $V_s / (F - \bar{u}_a)$ には容積吸気速度の定常値 \bar{u}_a (定数) がふくまれているから、もし、缶内真空度をリーク弁のオン・オフ動作で制御するような場合はリーク弁の開閉に応じて時定数がそれぞれ V_s / F , $V_s / (F - \bar{u}_a)$ となることに注意しなければならない。このような動特性の非対称性は一般のプロセス動特性においてしばしば見られるものである。この非対称性は一般には、その程度は操作特性として問題にする必要がないほど小さいものである。なお、リーク弁から吸入される空気は、通常の缶内真空度が $50 \sim 200 \text{ mmHg. abs.}$ くらいであるから、音速で吸入されるのが常である。

4-1.4 気相側圧力の操作に対する沸騰液温度の変化

真空結晶缶内の母液は沸騰濃縮されているから、その温度は定常操作時においては、必ず沸点に保たれている。このような場合の母液温度の制御は気相側の圧力操作による沸点制御方式以外にはない。沸点付近における伝熱と蒸発の機構は複雑で、しかも統一的な取扱いが困難であると言われている。本節では、このようなプロセスを沸騰プロセスと呼び、このプロセスの動特性が相変化を伴わない液体の単純な加熱プロセスとくらべて異質下面⁽⁵⁾があることに着目し、沸騰プロセスの一般的な動特性を考察する。

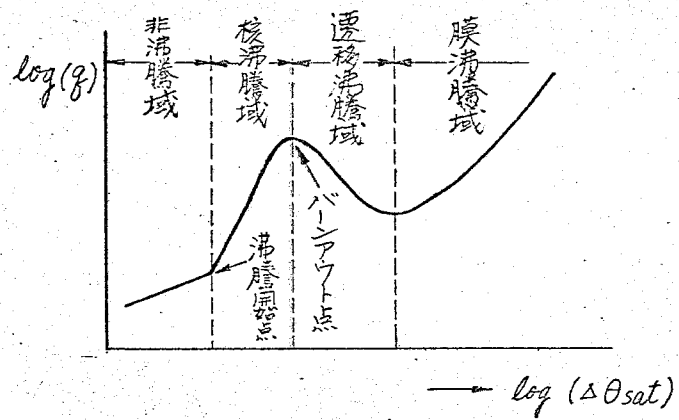
まずはじめにこのプロセスの性質を明確にするため、沸騰の伝熱機構について述べる。⁽⁶⁾ 液体を加熱してゆくと、はじめのうちはほとんど直線的に実効加熱速度に比例して液体温度が上昇するが、沸点に近づくにつれて加熱面境界層内は飽和温度に近づいて加熱面から気泡を発生し、やがていわゆる沸騰現象を呈する。定常的な沸騰状態では、液の温度は液に接する気相の圧力に対応した沸点以上には上昇しない。沸騰状態における伝熱機構は従来からの研究による図4-1.4のような領域に区別されている。この図から分るように、沸騰開始点を境として伝熱の機構が全く異なっている。沸騰伝熱論の知識によると、沸騰をはじめた液への加熱面からの伝熱速度はもはや Fourier の式を満足せず、たとえば飽和核沸騰状態においては加熱面と沸騰液との温度差 $(\theta_0 - \theta_m)$ 、すなわち壁面加熱温度差の約3乗に比例することが示されている。^(*)

つぎに沸騰プロセスにおける沸騰液の温度分布と蒸発に伴う熱の移動速度についての考察をせねばならない。沸騰中の液体では図4-1.5(a)に示すような割合で、伝熱面から伝達された熱の大部分は伝熱面上での気泡発生のために消費せられ、上昇中の泡への伝熱や自由表面からの静かな蒸発による熱放散の割合は非常に小さいことが分っている。また、液の温度分布は同図(b)に示されるように、対流による混合が充分であれば液中での高さ方向の

(*) Insinger - Bliss の実験式を簡略化した Jacob の式を例示すれば、たとえば 40% 蔗糖液についての沸騰熱伝達式は

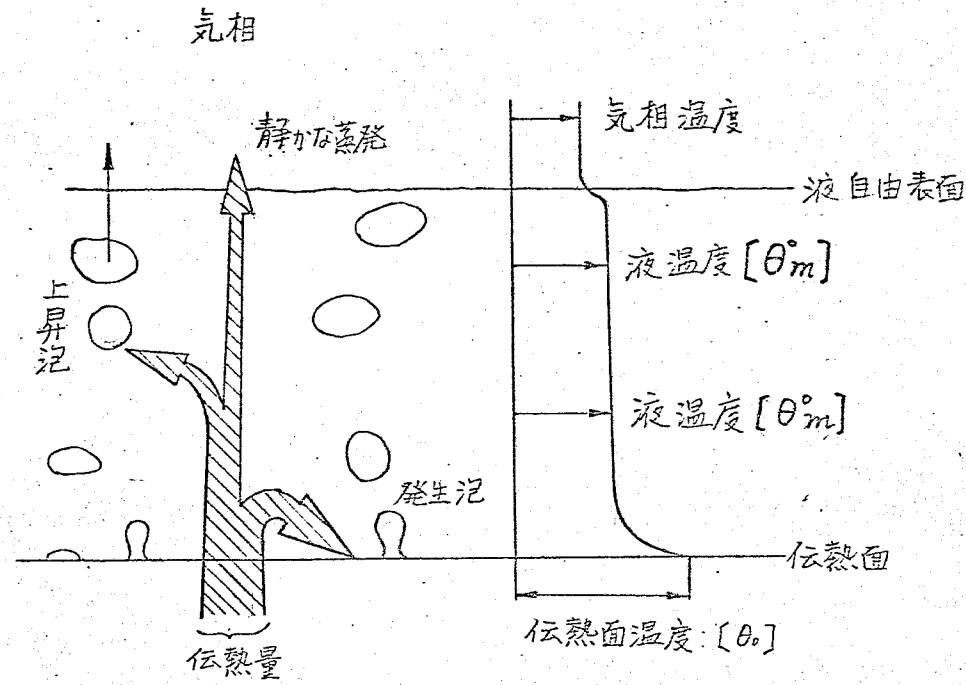
$$Q \approx 1.95 (\theta_0 - \theta_m)^3$$

このように伝熱速度 Q は液の沸点 θ_m 、すなわち気相側圧力で定まる液の飽和温度、の変化に非常に敏感である。



$\Delta\theta_{sat}$: 壁面過熱温度
 q : 熱流束(熱負荷)

図 4-1-4 沸騰曲線と領域



a) 伝熱量の配分

b) 温度分布

図4-1.5 沸騰プロセスにおける伝熱量配分と温度分布

温度差がほとんど見られないという現象も周知のことである。

以上の考察にもとづいて沸騰プロセスの温度特性を求める。沸騰中の液の量は不変とし、その熱当量を C とする。熱収支式は (4-1.9) 式で示した通りである。

$$C \frac{d\theta_m}{dt} = Q - j_{mh} \quad (4-1.9)$$

ただし、 θ_m は液の温度、 Q は伝熱速度、 j_{mh} は蒸発熱速度で、蒸発速度 j_{mw} との間には $j_{mh} = r_m j_{mw}$ の関係がある。ただしここで r_m は蒸発の潜熱である。この (4-1.9) 式は加熱プロセスの温度特性をあらわす一般式である。

いま、加熱面温度 θ_0 が液の沸点 θ_m^0 より十分に低い場合の伝達関数はすでに求められているが、後で比較する便を考慮のため導いておく。伝熱速度 Q は熱伝達率 α を用いて

$$Q = \alpha (\theta_0 - \theta_m) \quad (4-1.23)$$

また蒸発熱速度 j_{mh} は Marcellin の蒸発速度式を用いて

$$j_{mh} = k_e r_m A (p_m - p_{s1}) \quad (4-1.24)$$

ここで、 k_e は蒸発係数、 A は蒸発面積、 p_m は液の温度 θ_m に対する飽和圧力、 p_{s1} は気相の蒸気分圧である。この両式を一般式、(4-1.9) 式に代入し、微小変域について液の温度 θ_m の伝達関係を求めると、すでに求められているように、

$$\Delta\theta_m = \frac{1}{1+\tau s} (K_1 \Delta\theta_0 + K_2 \Delta p_{s1})$$

$$\tau = \frac{C}{\alpha + k_e r_m A k_{epo}} \quad (4-1.25)$$

$$K_1 = \frac{\alpha}{\alpha + k_e r_m A k_{epo}}, \quad K_2 = \frac{k_e r_m A}{\alpha + k_e r_m A k_{epo}}$$

である。ここで、 $\Delta p_m = k_{epo} \Delta\theta_m$ の関係を用いた。この伝達関数 (4-1.25) 式では、通常は液面からの蒸発にもとづく放熱の寄与は小さく、これを無視して $K_2 = 0$ と置く場合が多い。(4-1.25) 式の過渡特性を図 4-1.6 に示した。(4-1.25) 式の応答が成立するのは、加熱面温度 θ_0 が液の沸点より十分に低く、沸騰している場合である。換言すれば気相側の全圧力が十分に高く、それに対応する液の飽和温度すなわち沸点が加熱面温度より十分に高く保たれているという場合に限られる。

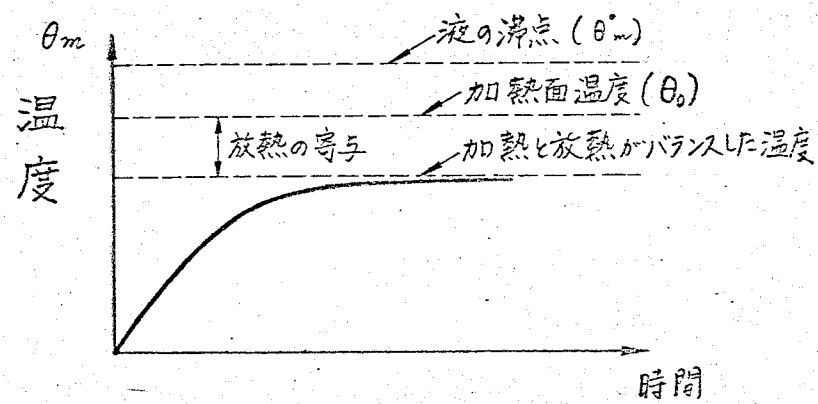


図 4-1.6 加熱プロセスのステップ応答

これに反して、本題のように缶内の蒸気空間が真空状態にあるような場合は、液の飽和温度すなわち沸点は大巾に低下しており、その結果、液は加熱により沸騰を起している。このような沸騰プロセスの液温度の動特性は未だ導かれてはいないが、加熱面温度よりもむしろ気相側圧力の影響が支配的になることが予想される。そこで次に、加熱面温度 θ_0 が液の沸点 θ_m^0 より充分に高い場合の液温度 θ_m の動特性を求めらる。

まず気相側の圧力を操作して、たとえばステップ状に圧力を下げた場合を考へてみる。このとき、沸騰液ははじめの定常温度からつぎの定常温度(沸点)へ降下してゆく。この過渡状態における液の自己蒸発速度は、加熱速度とほとんど無関係に行はれることが筆者の実験によっても確かめられており、また定常沸騰状態におけると同様に、気相側の蒸気分圧にも関係なく蒸発することが分っている。(5-2節参照のこと)ところがこの自己蒸発速度の関係因子はあまりにも多く、その正確な記述は極めて困難といわれている。⁽⁷⁾そこで、この過渡状態における蒸発熱速度 j_{mh} を、以下に述べるように、速度論の立場から定式化を行はれ、新しく沸騰係数という概念を導入して沸騰プロセスの動特性を求めることができることを示す。

沸騰中の定常蒸発熱速度 j_{mh} は言うまでもなく加熱速度 Q に等しい。この定常蒸発熱速度を j_{mh}^0 と置く。また、過渡状態における蒸発熱速度 j_{mh} のうち、自己蒸発による寄与分は加熱速度 Q には関係なく、液の過熱度 $(\theta_m - \theta_m^0)$ に大きく依存すると考へられる。そこで筆者はこのことを速度式で表現するために反応速度論⁽⁸⁾の概念を導入して、形式的に次のような速度式を設定した。

$$\begin{aligned} j_{mh} &= j_{mh}^0 \cdot K_b \\ &= j_{mh}^0 \cdot e^{-\beta(\theta_m - \theta_m^0)} \end{aligned} \quad (4-1.26)$$

この式の右辺才2項 K_b を沸騰係数と名付ける。 β は液の物性と容器の形状、表面状態などで定まる定数である。この沸騰係数 K_b の概念は、液が自己蒸発を行はれはばら自身の温度を下げる場合だけでなく、液が加熱され温度上昇して次才に沸点近傍に近づく場合にも拡張することができる。この考へを図4-1.7に示す。また、定常蒸発熱速度 j_{mh}^0 は、さきに述べたように

$$j_{mh}^0 = j_{mh} \Big|_{\theta_m = \theta_m^0} = Q \quad (4-1.27)$$

(4-1.26), (4-1.27)式を基礎式(4-1.9)式に通用すると

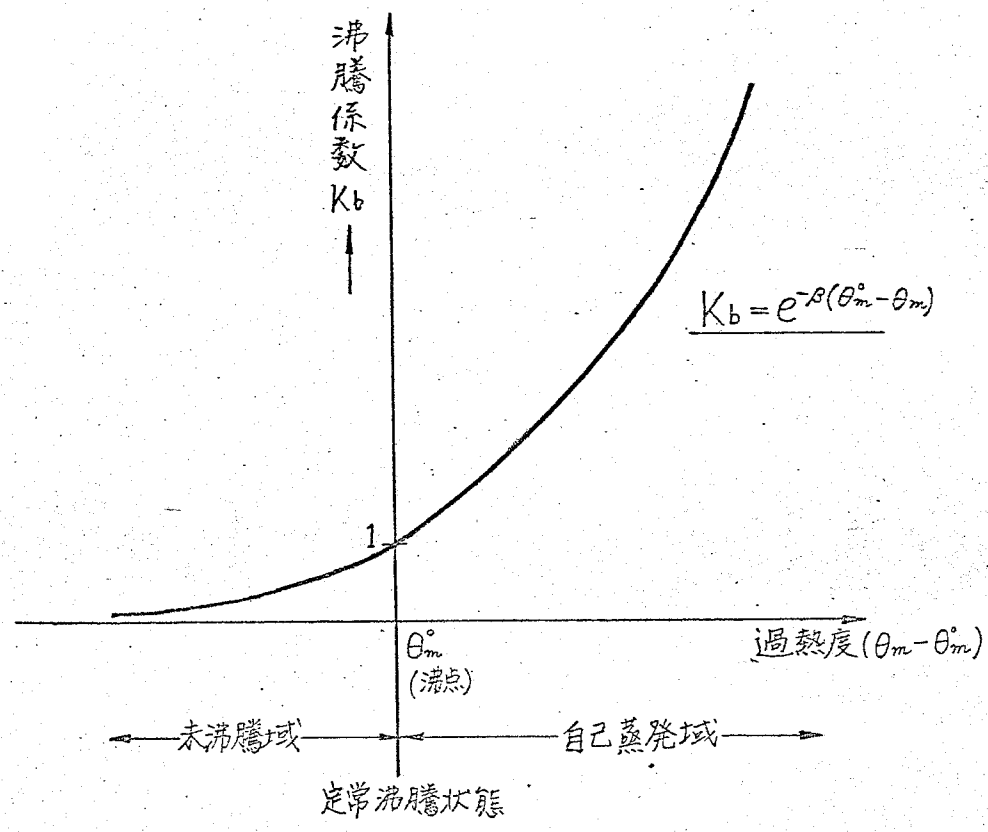


圖 4-1-7 沸點附近的沸騰係數

$$C \frac{d\theta_m}{dt} = Q \left\{ 1 - e^{-\beta(\theta_m^* - \theta_m)} \right\} \quad (4-1.28)$$

ここで、加熱速度 Q は加熱部における定常熱伝達速度を意味している。本題の真空結晶釜はもちろんのこと一般に濃縮フロントにおける加熱用熱媒体には水蒸気またはダウサムなどが用いられており、またこれらの熱媒体は工場内のユーティリティとして集中管理されているからその温度はほぼ一定であると考えられる。

ゆえに、ここでは液温度 θ_m に対する入力項として気相側圧力 P_s をとることにする。(4-1.28)式を微小変域に対する関数形に変換し、液の飽和温度 θ_m^* に対する飽和圧力 P_s の関係を $\Delta\theta_m^* = k_{op}\Delta P_s$ とおくと、(4-1.28)式より

$$\left\{ \bar{Q}\beta e^{-\beta(\bar{\theta}_m^* - \bar{\theta}_m)} + CS \right\} \Delta\theta_m = \bar{Q}\beta e^{-\beta(\bar{\theta}_m^* - \bar{\theta}_m)} k_{op} \Delta P_s$$

ゆえに

$$\Delta\theta_m = \frac{k_{op}}{1 + \tau_2 S} \Delta P_s \quad (4-1.29)$$

ただし

$$\tau_2 = \frac{C}{\bar{Q}\beta e^{-\beta(\bar{\theta}_m^* - \bar{\theta}_m)}} \quad (4-1.30)$$

これが筆者が求めた沸騰プロセスの液温の動特性式である。この伝達特性は1次おくれ系の特性を示している。

液加熱プロセスの温度の上昇や下降に関して、われわれは常識的に、液の温度を早く上昇させるためには加熱(速度)を大きくし、逆に温度を早く下げるためには冷却するかまたはせいぜい加熱(速度)を小さくすべきだと考えている。このような常識は、液の温度が沸点以下のときには正しいが液が沸騰しているプロセスの場合には必ずしも正しくない。なぜならば、気相側圧力を上げることによって液の温度を再び沸点まで上昇させる時の上昇速度はなるほど加熱(速度)の大きい方が早いかとも、気相側圧力を下げることによって液の温度を下げる場合には、温度を下げる直接の操作力となっている定常蒸発と自己蒸発の両作用のうち、定常蒸発熱速度(\dot{m}_a)は(4-1.27)式に示すように加熱速度(Q)に比例している。したがってこのような沸騰

プロセスの液温度を早く下げるためには、逆説的に聞えるようであるが、やはり加熱速度は大きくせねばならないことが言える。(4-1-30)式に示した時定数 τ_2 の関係式はまさにこのような現象を正しく根拠づけるものであって、温度の上昇と下降のいずれの場合についても、定常加熱速度 Q が大きいほど温度変化の過渡的速さを示す時定数 τ_2 は大きいことを示している。なお、このような逆説的な現象は今までいろいろな沸騰プロセスで経験されていたことであったが、上述の筆者の解析によってこの現象に明確な根拠を与えることができた。

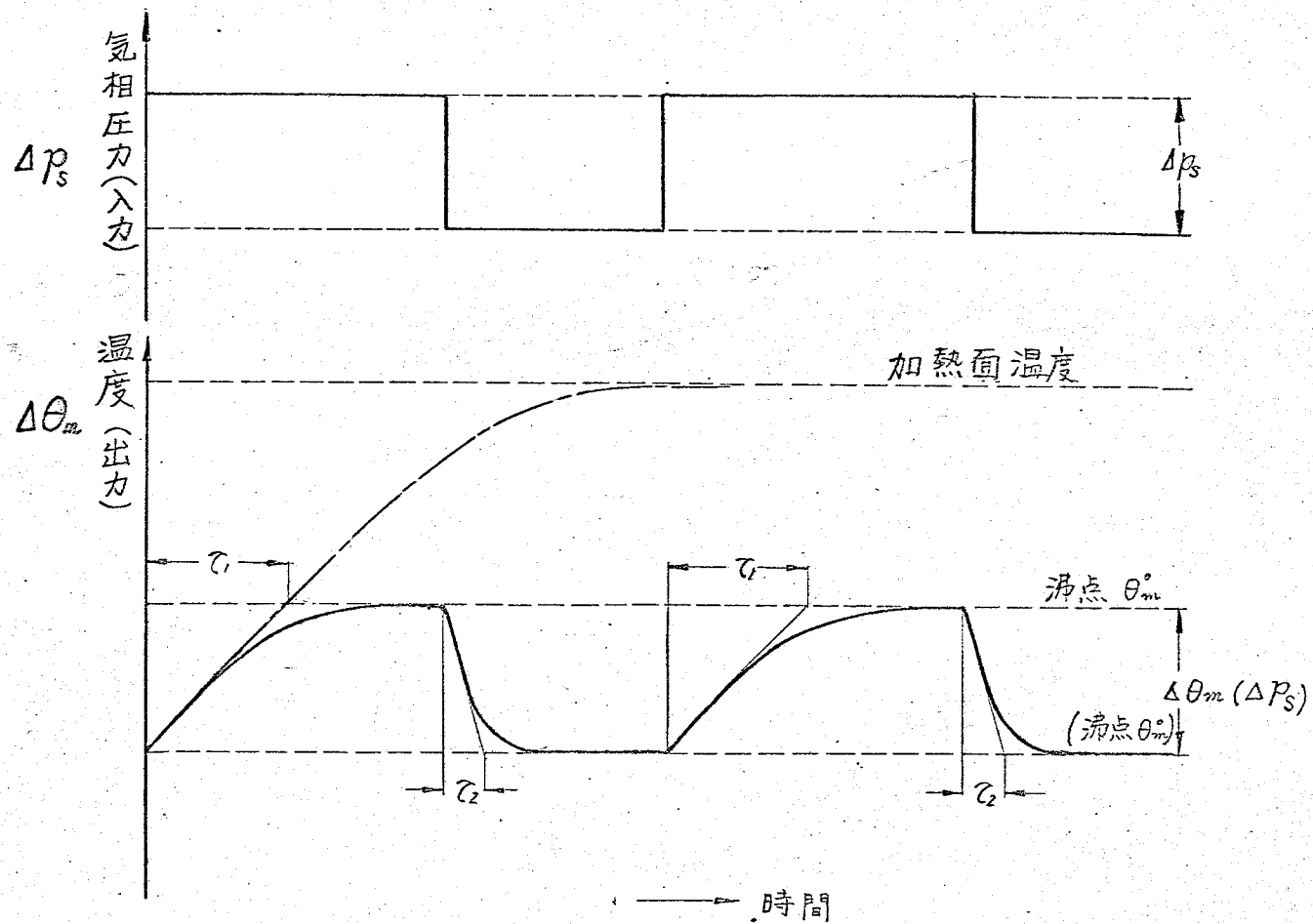
今まで述べて来た沸騰プロセスの動特性をまとめるために沸騰点近傍における液の過渡的な温度変化を図4-1-8に図示した。この図で明らかのように、沸騰プロセスの沸騰温度の動特性は上下非対称である。すなわち気相側圧力を下げて($\Delta P_s < 0$)液の温度を低下させる場合($\Delta \theta_m > 0$)は(4-1-30)式で示した通り τ_2 の時定数をもつ1次おくれ特性を示す。逆に圧力を上げて($\Delta P_s > 0$)液の温度を上昇させる場合($\Delta \theta_m > 0$)は図の鎖線に沿って上昇し、沸点 θ_m で飽和するような温度上昇特性を示すと考えられるが、温度が沸点近傍に近づくと共に沸騰プロセスの特性を帯びてくるから、ここでは図に示したように τ_1 の時定数をもつ1次おくれ特性で近似して表現することにした。ゆえに τ_1 は一般の加熱プロセスと同じように、 $\tau_1 = c/\alpha$ で表わすことができる。以上の結論を表4-1-2にまとめた。

4-1-5 過飽和度の変化

濃縮期において母液がどのように濃縮されてゆくかを的確に把握することは、シーケンス制御における工程切換えを行なうために不可欠である。本項では濃縮過程に沿って母液の過飽和度がどのように変化してゆくかを述べる。^(*)

濃縮の度合いを表示する直接的な方法は濃度であるが、結晶化を目的とする晶析装置においては晶出と結晶成長速度の直接的な因子である過飽和度を用いるのが便宜である。過飽和度(Σ)は母液の濃度分率 \bar{c}_m とその飽和

(*) 過飽和度は濃縮期において検出はされているが、フィードバック制御はされていない。それゆえここでは過飽和度の動特性は導けなかった。



$$\left\{ \begin{array}{l} \text{沸点が下降のとき: } \tau_2 = C / \alpha \beta e^{-\beta(\theta_m^\circ - \bar{\theta}_m)} \\ \text{沸点が上昇のとき: } \tau_1 = C / \alpha \end{array} \right.$$

図 4-1-8 沸騰プロセスの液温度の非対称なステップ応答

表 4-1-2 沸騰プロセスの非対称特性

入 力	出 力	時 定 数
$\Delta p_s > 0$	$\Delta \theta_m > 0$	$\tau_1 = C/\alpha$
$\Delta p_s < 0$	$\Delta \theta_m < 0$	$\tau_2 = C/\bar{Q}\beta e^{-\beta(\bar{\theta}_m - \theta_m)}$

p_s : 缶内真空度(圧力) [Kg/m^2]

θ_m : 沸騰液温度 [$^{\circ}\text{C}$]

θ_{m2} : 液の飽和温度 [$^{\circ}\text{C}$]

τ_1, τ_2 : 時定数 [hr]

C : 液の熱当量 [$\text{Kcal}/^{\circ}\text{C}$]

Q : 加熱速度 [Kcal/hr]

α : 伝熱係数 [$\text{Kcal}/\text{hr}\cdot^{\circ}\text{C}$]

β : 沸騰係数

濃度分率 \widetilde{C}_{m_2} との比, $\widetilde{C}_{m_2} / C_{m_2}$, で与えられている。^(*) 飽和濃度分率は母液の温度 θ_{m_2} だけの関数と考え, ここで与えの他の因子たとえば純度, 不純物の影響などは無視する。

過飽和度を濃度で表わせば

$$\delta = \frac{\widetilde{C}_{m_2}}{C_{m_2}^0} = \frac{C_{m_2}(1 - C_{m_2}^0)}{C_{m_2}^0(1 - C_{m_2})} \quad (4-1.31)$$

となる。ここで溶液の飽和濃度 $C_{m_2}^0$ と温度との関係はいわゆる溶解度曲線で知ることが出来る。またその両者の関係式には溶質と溶媒との化学的性質にもとずいて多くの形が提案されている。しかし, プロセス制御の立場から見れば取り扱うべき溶液の温度範囲は比較的狭いから, 飽和濃度が温度の1次式かせいぜい2次式で表現されると考えれば充分である。^(**)

まず濃度 C_{m_2} の濃縮過程を求めろ。濃縮中は母液の注入や差し水はないから, 定常操業における基礎式は

$$\frac{d}{dt} (V_m \delta_{m_2}) = -j_{m_2} \quad (4-1.33)$$

$$\frac{d}{dt} (V_m \delta_{m_2} C_{m_2}) = 0 \quad (4-1.34)$$

(*) 本論文では濃度と濃度分率を次のように定義する。すなわち, 溶液中の溶質重量を m , 溶媒重量を w とすれば, 濃度 C_{m_2} および濃度分率 \widetilde{C}_{m_2} は

$$C_{m_2} = \frac{m}{w+m}, \quad \widetilde{C}_{m_2} = \frac{m}{w}$$

ゆえに両者の間には

$$\widetilde{C}_{m_2} = \frac{C_{m_2}}{1 - C_{m_2}}$$

の関係がある。

(**) たとえば, 筆者が実験に供した蔗糖溶液については, その溶解度曲線は図4-1.9のようであるが, この曲線は次式で充分に表現できている。

$$C_{m_2}^0 = 64.18 + 0.134 \theta_{m_2} + 0.000531 \theta_{m_2}^2 \quad (4-1.32)$$

ただし, 上式において θ_{m_2} は母液温度 [$^{\circ}\text{C}$], $C_{m_2}^0$ は飽和濃度 [g. sucrose / 100g of solution] である。

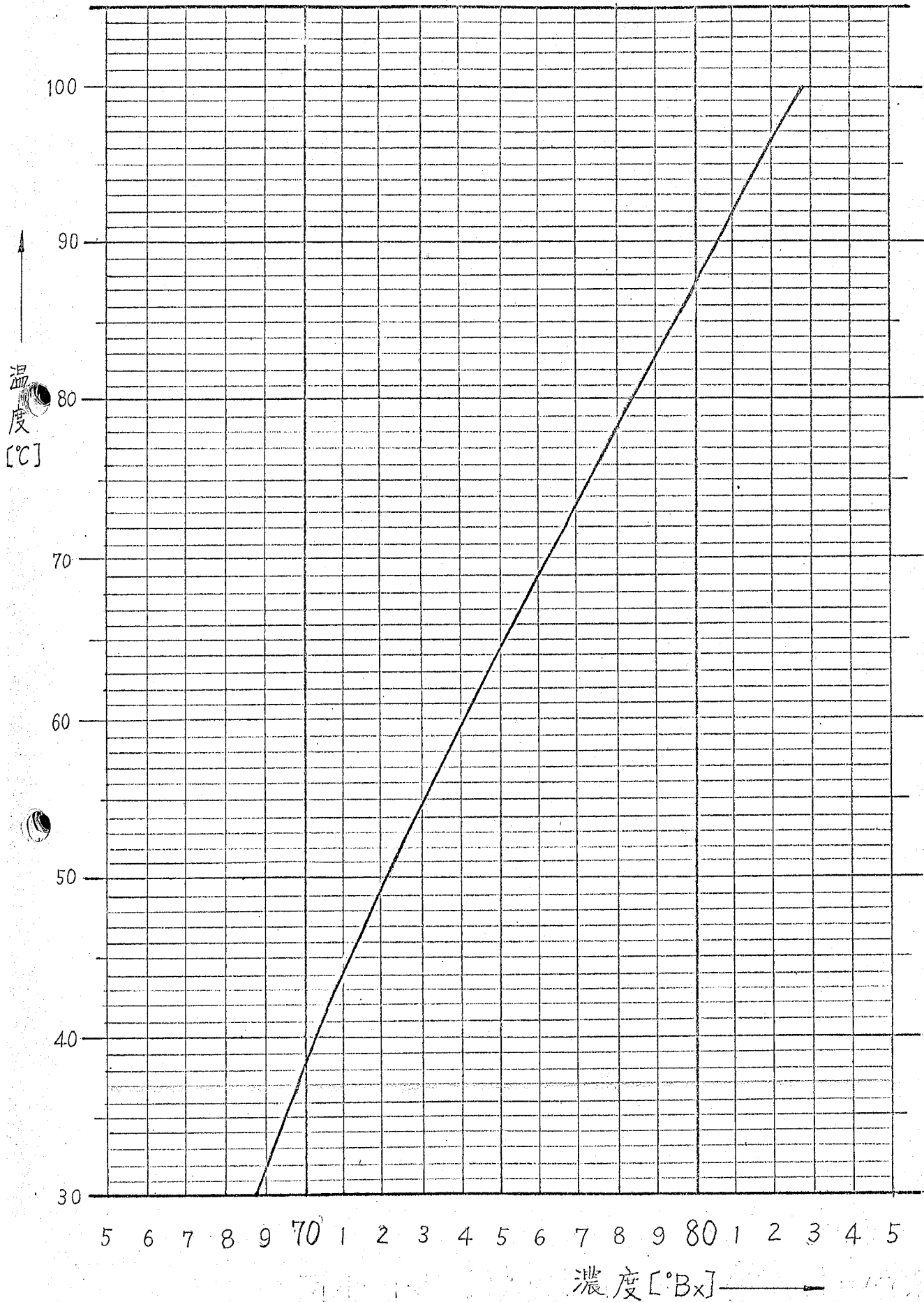


図 4-1.9 蔗糖の溶解度曲線(純糖率=100%)

ここで、 V_m は母液容積 [m³]、 γ_{m2} は比重量 [Kg/m³]、 j_{mw} は蒸発速度 [Kg/hr] である。 j_{mw} を加熱速度 Q と母液の蒸発潜熱 r_{m2} を用いて表わすと

$$j_{mw} = \frac{Q}{r_{m2}} \quad (4-1.35)$$

と仮定から、(4-1.33)、(4-1.34) 式は

$$V_m \gamma_{m2} = V_m^* \gamma_{m2}^* - \int_{t^*}^t \frac{Q}{r_{m2}} dt, \quad (4-1.36)$$

$$V_m \gamma_{m2} C_{m2} = V_m^* \gamma_{m2}^* C_{m2}^* \quad (4-1.37)$$

上式において、 V_m^* 、 γ_{m2}^* 、 C_{m2}^* はそれぞれ濃縮開始時刻 t^* の値、すなわち初期値である。定常操業中の加熱速度 Q は、濃縮時間をできるだけ短縮するため、装置能力の最大限界で供給されているのが常であり、また一方蒸発潜熱 r_{m2} は操業域内ではほとんど一定と見られて差支えない。ゆえに(4-1.36)式右辺の、才2項は簡単化され、(4-1.37)式を連立して解けば

$$C_{m2} = C_{m2}^* \left(1 - \frac{Q}{V_m^* \gamma_{m2}^* r_{m2}} t\right)^{-1} \quad (4-1.38)$$

右辺における時刻 t の係数は、(蒸発速度) ÷ (初期仕込量) を表わしており、この値は一般に小さいから、濃縮期という短い期間内では近似的に

$$C_{m2} = C_{m2}^* \left(1 + \frac{Q}{V_m^* \gamma_{m2}^* r_{m2}} t\right) \quad (4-1.39)$$

ゆえに過飽和度の定常的値経過は(4-1.39)式を(4-1.31)式に適用すれば

$$\bar{z} = \bar{z}^* \left(1 + \frac{Q}{V_m^* \gamma_{m2}^* r_{m2} (1 - C_{m2}^*)} t\right) \quad (4-1.40)$$

このように過飽和度の濃縮期における変化を導くことができた。ここで \bar{z}^* は初期の過飽和度で、通常より少し小さい値をもっている。

4-2 起晶期の特性解析

あらかじめ用意された結晶種の吸込みによって懸濁状になった母液が、安定なマスクット(*)となるまでの期間を起晶期と呼ぶことにする。この起晶期という期間は、従来の区分法にはなく、ほとんど育晶期に属するものであったが、作業と工程の内容を制御工学的に検討した結果、筆者の定義するこの起晶期を設ける必要があることが分った。

起晶作業の目的は、一般にマスクット(もしくは白下)とされているところの母液と結晶粒子の懸濁液を固液2相系の安定な状態に整定させる点にあり、この作業によって結晶粒子の安定な育晶を行なわせる素地を作ることに主眼が置かれている。一般に起晶期の開始点すなわち起晶点は母液の過飽和度で規定されている。過飽和度は濃度と温度で一意的に定まるからそれぞれ温水注入および缶内真空度を操作するのがもっとも効果的であり適切である。第2章の2-2節ですでに説明した操作内容をもとにして、図4-2-1に起晶期における入出力を示した。ただし、この図でカタサという量は育晶期への切換え点を検出するために設けられたもので、起晶期において制御される量ではない。

本節は基礎式、定常関係式、動特性の3項よりなっている。ここで言う定常関係式とはプロセスの定常状態(ここでは、母液の過飽和度、温度、缶内真空度が一定である状態)において、制御量および操作量などの間に成立する関係を定式化したものであって、プロセス制御系

* 安定なマスクットとは、母液中に懸濁された結晶粒子が定常な成長速度で成長し、偽晶の発生(結晶の晶出)や双晶、塊晶などの異常成長が見られないようなマスクットを指す。種入れ直後のマスクットは不安定になりやすい。

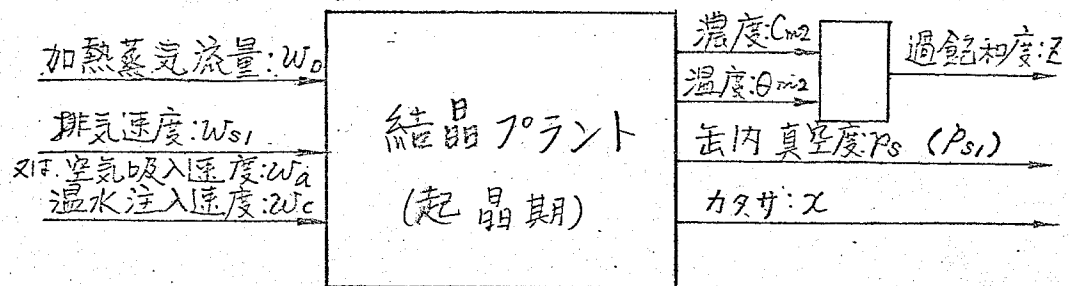


図 4-2-1 起晶期における入出力

の設計(たとえば制御弁のサイズ決定)のみならず化学工学的にも重要な関係式である。動特性は過飽和度についてだけ議論した。それは起晶期において実際に制御せねばならない制御量は缶内真空度と過飽和度であるが、前者は起晶期(4-1)の場合と同じに扱えるので省略したためである。

4-2.1 基礎式

起晶期における基礎式は次の通りである。ただし記号の説明は図4-2.2にまとめた。

マスキットの母液に関する物質収支式は

$$\frac{d}{dt}[(Al - V_d)\gamma_{m2}] = W_c - j_{mw} - j_{dw} \quad (4-2.1)$$

結晶粒子の成長速度は

$$\frac{d}{dt}[V_d \gamma_d] = j_{dw} \quad (4-2.2)$$

マスキットの母液中に溶解している溶質についての物質収支式は

$$\frac{d}{dt}[(Al - V_d)\gamma_{m2} C_{m2}] = -j_{dw} \quad (4-2.3)$$

缶内の蒸気空間に関する物質収支式は

$$\frac{d}{dt}[A(L_0 - l)\gamma_{s1}] = j_{mw} - W_{s1} + W_a \quad (4-2.4)$$

ただし、 W_a の項は操作量としての空気吸入、缶体部分の不可避な漏洩空気および母液内部からの不凝縮ガス発生との和とする。また、 W_{s1} は蒸気成分だけの排出速度を意味する。

マスキット全体の熱収支式は

$$\frac{d}{dt}[Al\gamma'_{m2} h'_{m2}] = Q + W_c h_c - j_{mh} \quad (4-2.5)$$

ただし、ここでは晶出熱、濃縮熱が全体の熱収支式に与える影響は非常に小さいので無視した。また缶外への伝

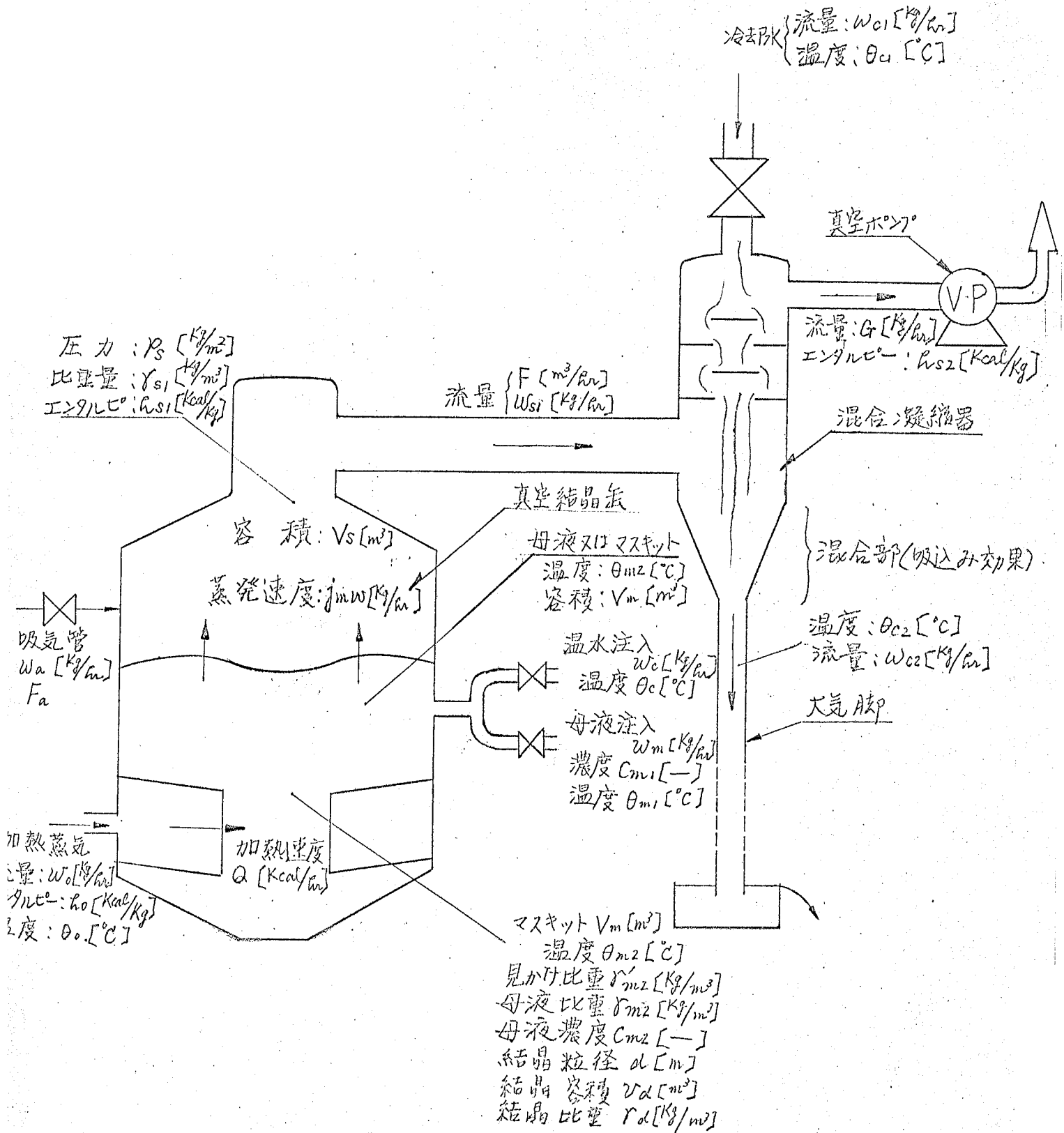


図 4-22 結晶缶の記号説明.

熱損失を考慮しなかつた理由は、一般に缶体にはかなりの保温材が巻きつけられていること、液温と外部との温度差が小さいこと、マスクット保有量に対する損失伝熱面積の比が小さいこと、などのために熱損失が小さいと考えられるからである。

結晶の成長速度は過飽和度 Σ の関数で

$$J_{dw} = K_s M A_d (\Sigma - 1) \quad (4-2.1) \quad (*)$$

カタサを支配する最大の因子は、マスクットに懸濁する結晶粒子のマスクット容積に対する容積比 ϕ_c であり、その他に母液の粘度も関係する。カタサという量は、かなりの不明確さを含む経験的質量であるが、従来の研究によるとこれを懸濁液の見かけ粘度として取扱、て差支えない事が分っている。⁽⁸⁾ また次章で述べる筆者自身の実験結果によってもこの扱い方を肯定することができ、しかし、第5章の実プラントについての筆者の実験によると、結晶缶の状態は一般に小さな変動範囲内に制御できるから、実質的にはカタサに含まれる母液の粘度の項が変動分としてほとんど寄与しないことが分っている。起晶期における容積比 ϕ_c はきわめて小さく、 $\phi_c < 0.1$ であるから懸濁液の見かけ粘度に關するいわゆる Einstein の式と適用することができ、

$$\Sigma = \Sigma_0 (1 + k_x \phi_c) \quad (4-2.2)$$

Σ_0 は母液の粘度に相当する量である。また係数 k_x の値は一般には約2.5といわれているが、ここではむしろ実験によって定めるべき定数と考えた方がよいと考えられる。この式は育晶期後半のように容積比が0.1~0.2より大きくなると成立しない。

(*) 一般に結晶の成長速度は(4-2.6)式の理論式で表わすことができる。

4-2.2 定常特性

起晶期における定常操業とは、母液の過飽和度、温度および釜内真空度を一定に保つ操業状態をいう。本項ではこのような場合の定常特性を誘導する。

(1) 結晶の定常成長速度

母液の過飽和度がいわゆる中間帯 (intermediate zone) に保たれておれば、その中に浮遊する結晶粒子は (4-2.6) 式に示した速度で成長をつづける。さて粒子の溶解や新しい結晶種の発生を伴わず偽晶の晶出はほとんど起らないものである。本項ではこのような状態の定常的な結晶成長速度を述べる。

基礎式 (4-2.1) ~ (4-2.4) に定常条件を適用すると、

$$\left(A \frac{dl}{dt} - \frac{dV_d}{dt} \right) \gamma_{m2} = W_c - j_{mw} - j_{dw} \quad (4-2.8)$$

$$\gamma_d \frac{dV_d}{dt} = j_{dw} \quad (4-2.9)$$

$$\left(A \frac{dl}{dt} - \frac{dV_d}{dt} \right) \gamma_{m2} C_{m2} = -j_{dw} \quad (4-2.10)$$

$$-A \gamma_{s1} \frac{dl}{dt} = j_{mw} - W_{s1} + W_a \quad (4-2.11)$$

(4-2.9) 式を (4-2.10) 式に代入すると

$$\left(\gamma_{m2} C_{m2} - \gamma_d \right) \frac{dV_d}{dt} = A \gamma_{m2} C_{m2} \frac{dl}{dt} \quad (4-2.12)$$

(4-2.9) 式および (4-2.11) 式を (4-2.8) 式に代入すると

$$\left(\gamma_d - \gamma_{m2} \right) \frac{dV_d}{dt} - W_c + W_{s1} - W_a = A \left(\gamma_{s1} - \gamma_{m2} \right) \frac{dl}{dt} \quad (4-2.13)$$

(4-2.12) (4-2.13) の両方から $\frac{dl}{dt}$ を消去すると

$$\left\{ \gamma_d - \gamma_{m2} - \left(\gamma_{s1} - \gamma_{m2} \right) \left(1 - \frac{\gamma_d}{\gamma_{m2} C_{m2}} \right) \right\} \frac{dV_d}{dt} = W_c + W_a - W_{s1}$$

蒸気空間の蒸気空気混合ガスの比重量 γ_{s1} は母液の比重量 γ_{m2} に比べて無視できるくらい小さいから、 $(\gamma_{s1} \ll \gamma_{m2})$ とき

で上式の左辺は簡単化でき、さらに $0 < C_{m2} < 1$ であるから

$$\gamma_d \frac{dV_d}{dt} = \frac{C_{m2}}{1 - C_{m2}} (W_{s1} - W_c - W_a) \quad (4-2.14)$$

この式の左辺は、(4-2.9)式に示した通り、結晶の定常的成長速度 j_{dw} に等しい。結晶が成長する過程では当然 $dV_d/dt > 0$ であり、また $0 < C_{m2} < 1$ である。したがって $W_{s1} > W_c + W_a$ でありなければならない。すなわち結晶が定常的に成長するためには、排気速度 W_{s1} は常に温水注入速度 W_c と不凝縮性ガス発生と空気吸入の速度 W_a の和よりも大きくなければならない、ということが分った。

さて次に結晶の定常的成長速度が一定過飽和度の下で時間的にどのように変化するかを解析する。(4-2.6)式によると

$$\begin{aligned} j_{dw} &= \gamma_d \frac{dV_d}{dt} \\ &= K_s M \alpha_d (z-1) \end{aligned}$$

ここで成長係数 K_s 、攪拌効果係数 M は一定とする。^(*)結晶表面積 α_d は、結晶粒子の平均代表径 d 、個数 n 、表面積係数 α_s を用いると

$$\alpha_d = n \alpha_s d^2$$

ゆえに (4-2.6) 式は

$$j_{dw} = K_s \cdot M \cdot (z-1) \cdot n \cdot \alpha_s \cdot d^2 \quad (4-2.15)$$

また、体積係数 α_v を用いると

$$\begin{aligned} j_{dw} &= \gamma_d \frac{dV_d}{dt} = \gamma_d \frac{d}{dt} (n \alpha_v d^3) \\ &= \gamma_d \cdot n \alpha_v \cdot 3 d^2 \frac{d[d]}{dt} \quad (4-2.16) \end{aligned}$$

(*) これらの係数については6章および7章で議論する。

(4-2.15) (4-2.16)式の両式は等しいから結局結晶粒子の平均代表径 d の変化は

$$\frac{d(d)}{dt} = \frac{K_s M \alpha_s}{3 \alpha_v \gamma_d} (z-1) \\ \equiv K_j (z-1) \equiv K_j \quad (4-2.17)$$

この右辺は定常状態では一定であるから、結晶粒径 d は

$$d = K_j t + d_0 \quad (4-2.18)$$

この関係式(4-2.17)、(4-2.18)式は結晶成長の線速度が一定であるといういわゆる ΔL 法則の真空結晶缶への具体的な応用式である。筆者がこの関係式を

$$t = \frac{1}{K_j} (d - d_0) \quad (4-2.19)$$

と書き直したことにより、育晶所要時間の算定と行なうことができる点に着目し、附録(4-2)にその一計算例を示した。なお育晶速度および育晶所要時間に関する(4-2.17)~(4-2.19)式は起晶、育晶両期を通じて成立する関係式である。(本章4-3節以降参照のこと)

さて、操作量の定常的な関係式は制御系の設計にとって重要である。操作量は以下のように結晶成長と密接な関係にあることを示す。結晶成長速度は

$$J_{av} = \gamma_d \frac{dV_d}{dt} \\ = 3 \gamma_d n \alpha_v K_j (K_j t + d_0)^2 \quad (4-2.20)$$

(4-2.14)式と連立させると

$$W_{s1} - W_c - W_a = 3 \gamma_d n \alpha_v K_j \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} (K_j t + d_0)^2 \\ = K_s M n \alpha_s (z-1) \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} (K_j t + d_0)^2 \quad (4-2.21)$$

右辺の時間 t 以外は定常状態では一定であるから、この関係式により、操作量となり得る排気速度 W_{s1} 、温水注入速

度 w_c 、空気吸入量 w_a の間の関係を規定することができる。起晶期の開始点 $t=0$ における値は (4-2.14) 式からも分るように

$$\begin{aligned} w_{s1} - w_c - w_a &= \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} \cdot K_s M a_d (z - 1) \\ &= \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} \cdot j_0 \quad (t=0) \end{aligned} \quad (4-2.22)$$

である。起晶直後の結晶の大きさは非常に小さいからこの右辺は非常に小さい値である。したがって種入れ直後は温水(差し水)の注入量に等しい排気を行えばよいことが分った。なお、図4-2.3に起晶期の定常操作量を示した。

$$w_{s1} = w_c + w_a$$

種入れ直後とそれ以降の上述の操作方法は実際の操業方法とよく一致している。すなわち、実際の操業において、種入れ直後の作業法はどのように微妙であって、前章で述べたように最小の循環用差し水にうまくバウンスさせて、母液の過飽和度をできるだけ一定に保つような排気と加熱蒸気、操作が要求されている。この操作の具体的なやり方を与えるのが (4-2.21)、(4-2.22) 式であって、これにより従来業者の基に頼ってきた方法に定量的な裏付けを与えることができた。

(iii) 液位変動

起晶期における液位変動は育晶期におけるほど大きくはない。しかしこの液位変動は熱収支および物質収支に影響するから、その程度を定量的に把握しておく必要がある。

(4-2.12) 式と (4-2.14) 式から dw/dt を消去すると

$$\frac{dl}{dt} = \frac{1}{A} \left(\frac{\gamma_{m2} C_{m2} - \gamma_d}{\gamma_d \gamma_{m2}} \right) \frac{1}{1 - C_{m2}} (w_{s1} - w_c - w_a) \quad (4-2.23)$$

ここで上式の各項を数値的に吟味すると最終的に $(dl/dt) < 0$ となっており、液位は常に低下することを示している。すなわちマスキットの総量および熱容量は徐々に小

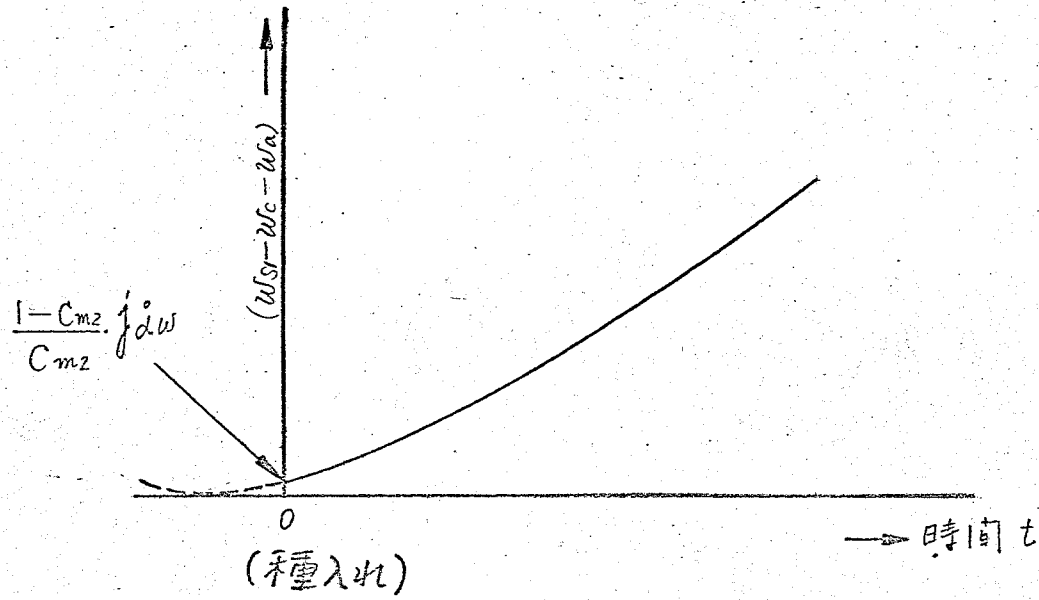


図 4-2-3 起晶期における種入れ以降の定常操作曲線

さくば、てゆくことを示している。(4-2.23)式に(4-2.21)式を代入すると

$$\frac{dl}{dt} = \frac{1}{A\delta d} \left(1 - \frac{\delta d}{\gamma_{m2} C_{m2}}\right) K_s M n \alpha_s (z-1) (K_j t + d_0)^2$$

結果を見やすくするため、上式を積分し(4-2.19)式を用いると

$$\therefore \frac{l_0 - l}{l_0} = \left(\frac{\delta d}{\gamma_{m2} C_{m2}} - 1\right) \frac{V_d - V_d^0}{A l_0}$$

ここで液位変動量を $\Delta l = l_0 - l$, 結晶体積増加量を $\Delta V_d = V_d - V_d^0$, 初期の母液量を $V_m^0 = A l_0$ とおくと

$$\frac{\Delta l}{l_0} = \left(\frac{\delta d}{\gamma_{m2} C_{m2}} - 1\right) \frac{\Delta V_d}{V_m^0} \quad (4-2.24)$$

これが液位変動率をあらわす式である。次章の結果によると、起晶期全般に亘る筆者の実験結果では、この液位変動率は3~6%程度で、これは(4-2.24)式の計算値とよく一致することが確認できた。(次章5-1.2(vii)参照のこと)

(iii) 加熱速度を含む定常関係式

本項では熱収支式を用いて加熱速度 Q (もしくは加熱蒸気流量 W_0) の定常関係式を導く。

マスキットの熱収支式は、すでに(4-2.5)式で与えた。

$$\frac{d}{dt} [A l \gamma_{m2} h_{m2}] = Q + h_c W_0 - j_{mh} \quad (4-2.5)$$

上式の左辺は

$$\begin{aligned} & \frac{d}{dt} [(A l - V_d) \gamma_{m2} h_{m2} + V_d \delta d h_d] \\ &= A \gamma_{m2} h_{m2} \frac{dl}{dt} + (\delta d h_d - \gamma_{m2} h_{m2}) \frac{dV_d}{dt} \end{aligned} \quad (4-2.5')$$

(4-2.14), (4-2.23)式を用いてこの(4-2.5')式を変形し、さらに(4-1.6)式の関係を導入すると

$$\begin{aligned} & -\gamma_{m2} h_{m2} \left(\frac{1}{\gamma_{m2} C_{m2}} - \frac{1}{\delta d}\right) j_{dw} + (h_d - \frac{\gamma_{m2} h_{m2}}{\delta d}) j_{dw} \\ &= \left(h_d - \frac{h_{m2}}{C_{m2}}\right) j_{dw} \end{aligned} \quad (4-2.25)$$

こゝで、

$$j_{m2} = r_{m2} W_s \\ = \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} r_{m2} - W_{c1} \quad (4-27)$$

ゆゑに(4-25)式に(4-26), (4-27)式を用ゐると、加熱速度 Q は

$$Q = (h_d - \frac{r_{m2}}{C_{m2}}) j_{dw} + \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} r_{m2} W_{c1} - h_c W_c \quad (4-28)$$

これが加熱速度 Q の定常関係式である。このように、加熱速度 Q は結晶の成長速度 j_{dw} , 冷却水流量 W_{c1} , および温水注入流量 W_c の3つの項の影響を受けることが分った。

つきに加熱速度 Q と加熱蒸気流量 W_0 との関係について考察する。結晶缶の加熱部がカウンドリア形式の場合、カウンドリアから排出されるドレンの温度 θ'_0 は

MacDonald らによると、実験的に

$$\theta'_0 = \theta_0 - 0.4(\theta_0 - \theta_{m2})$$

である。この式を用ゐれば、定常状態では加熱速度 Q は

$$Q = W_0 (h_0 - C_1 \theta'_0) \\ = W_0 \{ h_0 - 0.6 C_1 \theta_0 - 0.4 C_1 \theta_{m2} \} \quad (4-29)$$

これが加熱蒸気速度 W_0 と加熱速度 Q との関係である。一般に工場用加熱蒸気は低圧飽和蒸気で送気されており、その温度および圧力はほとんど変化しないと見てよい。したがってマスキット温度 θ_{m2} が大きく変らぬ限り加熱速度 Q は蒸気速度 W_0 に比例すると考えることができる。

(iv) カクサの変化

結晶粒子の数と粒度が安定し、定常的に成長が見られるようになる起晶期後半において、結晶粒子の容積分率 ϕ の増大に伴いマスキットのカタサは加速度的に増大してくる。起晶期間内は通常このカタサの制御は行なわれないが、カタサの時間的な変化は育晶期への切換えを決定する目安として知る必要がある。本項ではこのカタサの時間的な変化について論述する。

11
 カクサはすでに述べたようにもともと感覚的な色彩の濃い量であるが、これを懸濁液の見かけ粘度という物理量で表現できる量であるとも言われている¹⁰⁾。すでに提案されている見かけ粘度式のうちで、いわゆる Robinson の式が、前文で述べたように、もっともよく適合することを実験的に確かめられている。¹¹⁾しかし起晶期間だけについて考えるとき、結晶分率 ϕ_v が 0.1 前後である事を勘案すれば、より簡単な次の Einstein の (4-2.2) 式で充分に表現できることはすでに明らかである。

$$\chi = \chi_0 (1 + k_x \phi_v) \quad (4-2.1)$$

ただし、 χ_0 は母液粘度に相当する項であるが以下ではこれを母液カクサと称する。また ϕ_v は結晶粒子の容積分率、 k_x は定数である。母液のカクサ χ_0 は濃度と温度に支配されるが、定常状態では一定と考えて差支えない。結晶粒子の容積分率 ϕ_v は次式で定義する。

$$\phi_v = \frac{V_d}{Al} = \frac{V_d}{V_m} \quad (4-2.3)$$

分母の項 $Al (= V_m)$ は起晶期間内においてほぼ一定とみられる。(前項参照のこと) 粒子容積 V_d は $V_d = n \alpha_v d^3$ であるから (4-2.17) (4-2.18) 式を用いると

$$V_d = n \alpha_v (K_j t + d_0)^3$$

ゆえにカクサ χ は

$$\chi = \chi_0 \left\{ 1 + k_x \frac{n \alpha_v}{V_m} (K_j t + d_0)^3 \right\} \quad (4-2.31)$$

このように起晶期のカクサは次第に急激な上昇変化を表現することが出来る。

(V) カクサおよびその制御量としての意義

カクサという量は従来から、ともなればある場面に使われることがあるから、ここで筆者の見解を述べ明確な工学的解釈を加える。

まず第一に、カクサという量はそれ自体が実用的な量であって絶対的の単位を表現することができない。このこ

とはカタサの計測法と密接に関係している。すなわち、結晶缶の制御因子の一つとして採用されているこのカタサという量は粘度に相当すると思われがちな量であるが、もしカタサの代りにマスキット粘度を適当な粘度計で検出したとしても、この粘度を制御量の一つとして採用することは無理であるということを経験的に明らかとなり、している。その理由は、カタサが粘度の他に流動度や粒度などシオロジ-的の量を複合的に包含しているからであると思われる。したがってカタサの検出も粘度計で行なうことはできず、そのため止むを得ず一般にカタサ計と呼ばれる一種の回転羽根トルク計で行なっているのである。このような立場から考えると、(4-21)、(4-22)式で与えられたカタサの式はあくまでも実用値を示すものと解釈すべきであって、上式中の η_0 は母液の粘度そのものでなく粒子容積分率が0の場合のカタサ計の値と考えるべき値である。また係数 R_x も同様にカタサ計の特性を含んだ実験定数と考へねばならない。このように、カタサはCGS単位や工学単位で表現することのできる実用的な量である。

つぎに、制御量としてカタサを用いることの意義は以下に述べる2点にあり、その見解を筆者は持つている。その一つは、結晶缶内のマスキットの循環をよくしてマスキットの場所的な偏寄をなくするための測度としてである。他の一つは結晶成長速度がもっと大きく、しかも偽晶の発生や双晶、塊晶などのくっつきをできるだけ抑止できるように結晶粒子間の距離を確保するための測度としてである。どのような解釈をしてみてもこれ以外の意義は認めることができない。この両者はよく考えてみると相反関係にあり、両者の均衡点に最適なカタサが存在する、ことを暗示している。カタサと支配する最大の因子はすでに得たように結晶粒子の容積分率であるから、この最適なカタサは言うまでもなく結晶粒子の成長と煎き上げ速度に依存して変化する。このように結晶缶の制

御量もしくは操業要因としてカタサを採用してきたことは実に巧妙な事であって、先賢のまほろしい洞察力に対し畏敬の念を抱かざるを得ない。

なお、カタサに関するさらに具体的考察は第7章(7-1節)において行なう。

4-2.3 動特性—過飽和度の動的特性

起晶期において制御すべき量は、第2章で論じた通り、過飽和度と缶内真空度の2つだけで必要かつ充分である。このうち後者の缶内真空度はマスケットの沸点を直接的に制御するためにとられている制御量であり、また一方、前者の過飽和度は定義によりマスケットの母液濃度と温度とから一意的に定まる制御量である。したがって動特性と求める立場からすれば、過飽和度の動特性と求めればこの中に缶内真空度の動特性も当然含まなければならぬ。ことにやるから、ここでは過飽和度の動特性を主に求める。

なお、制御系の立場から考えると、過飽和度の制御については、稀釈のための温水注入と濃縮のための蒸気加熱が主たる操作量であって、マスケット温度の制御すなわち真空度の制御は過飽和度制御系に対する補助的の一種の外乱制御と考えるべきだと筆者は考えている。なぜならば、もともと缶内真空度の制御は、母液の温度を結晶化操業に差支えない最高許容温度に保持するという物理的の操業制約から生まれたものであるからである。したがって母液温度をもって過飽和度を直接制御するという方法は、結晶の紅上り品質の低下と母液の劣化を招くおそれがあるから好ましくない。

過飽和度 α は定義により

$$\alpha = \frac{C_{m2}(1 - C_{m2}^0)}{C_{m2}^0(1 - C_{m2})}$$

ここで C_{m2} は母液濃度 [Kg. solute / Kg. soln]、 C_{m2}^0 はその

母液と等しい温度における飽和濃度である。上式を微小変域の関係式に変形して整理すると

$$\Delta z = \frac{1 - \bar{C}_{m2}^0}{\bar{C}_{m2}^0 (1 - \bar{C}_{m2})^2} \Delta C_{m2} - \frac{\bar{C}_{m2}}{(\bar{C}_{m2}^0)^2 (1 - \bar{C}_{m2})} \Delta C_{m2}^0 \quad (4-2.33)$$

上式右辺の ΔC_{m2} と ΔC_{m2}^0 は (4-1.29), (4-2.5), (4-2.28) 式および基礎式 (4-2.1) (4-2.5) 式を用いることにより、加熱蒸気流量 W_0 , 温水注入速度 W_c と缶内真空度 p_s の操作量で表現することができる。(この誘導については附録(4-3)参照のこと)。

その結果、求めべき過飽和度の動特性は

$$\Delta z = \frac{\Delta W_0}{T_{w0} S} - \frac{\Delta W_c}{T_{wc} S} - \frac{K_{ps}}{1 + \tau S} \Delta p_s \quad (4-2.34)$$

ただし

$$T_{w0} = \frac{\bar{C}_{m2}^0 (1 - \bar{C}_{m2})^2 r_{m2} (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \{ \bar{r}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) K_{rm} \}}{K_q (1 - \bar{C}_{m2}^0)}$$

$$T_{wc} = \frac{\bar{C}_{m2}^0 (1 - \bar{C}_{m2})^2 r_{m2} (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \{ \bar{r}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) K_{rm} \}}{(r_{m2} - C_0) (1 - \bar{C}_{m2}^0)}$$

$$K_{ps} = \frac{\bar{C}_{m2} K_{c0} K_{op}}{(\bar{C}_{m2}^0)^2 (1 - \bar{C}_{m2})}$$

ここで、 W_0 : 加熱蒸気流量 [kg/hr], W_c : 温水注入速度 [kg/hr]
 p_s : 缶内真空度 [kg/cm² または mm Hg] とする。この値は表 4-1.2 に示した通りである。

上式に示したように、この特性式は3項から成り立っており、加熱蒸気流量 W_0 と温水注入速度 W_c に関しては積分性で、缶内真空度に関しては1次微小特性があらわれている。のちに制御系の設計(第8章)において議論するように、過飽和度の制御に対する主たる操作量は、温水注入速度 W_c ではなく、加熱蒸気速度 W_0 でなければならぬ。このとき温水注入はカクサの主たる操作量である。一方、缶内真空度の制御は混合凝縮器の冷却水量もしくは吸気弁開閉のいずれかを操作量として行うことができる。(前節参照のこと)。亦てに本項 4-2.3 の冒頭で指摘したように、この (4-2.34) 式の右辺第3項は缶内真空度過飽和度に与える影響項と解釈すべきものである。

4-3 育晶期およびそれ以後の特性解析

本節では育晶期とそれにつづく煎き締め期の特性を一括して議論する。

育晶期とは、母液の連続注入を開始する時から、結晶粒子が所定の大きさに成長した時までを言う。また煎き締め期は育晶期につづく仕上げ工程の時期を言う。煎き締め期では、いわゆる水煎き操作によって偽晶を消滅させて粒度を揃え、さらにいわゆる煎き締め操作によって結晶の収率を向上させて、最終的に落糖に通したカタサに調整する。この煎き締め期は最終的にはカタサの調整だけ行なうのが主目的であるから、温水注入に対する特性にだけ着目すれば十分である。したがって育晶期におけるカタサの特性に含めて議論するこゝができる。

育晶期は回分式真空結晶缶の特性を総合的にしかも特徴的に示す期間があり、あえて言うならばこれ以前の期間はすべてその準備期間であると言えよう。

育晶期の入出力を図4-3-1に示す。

本節は5項よりなる。まず4-3-1ではこの育晶期における特徴を制御工学的に議論し、とくにカタサという制御量かき重要な役割りを強調する。4-3-2では育晶期全般の基礎式を示す。定常関係式の誘導は4-3-3で行ない、結晶の定常成長速度をもとにして各操作量間の定常関係式を求め、また液位変動の特性もここに含めて導く。4-3-4では煎き締め期をも含めてカタサの特性を議論する。過飽和度、カタサ、缶内真空度の3つの制御量に関する動特性のうち、缶内真空度の動特性は4-1節ですでに示したからここでは省略し、4-3-5において他の2つすなわち過飽和度とカタサの動特性について詳論する。

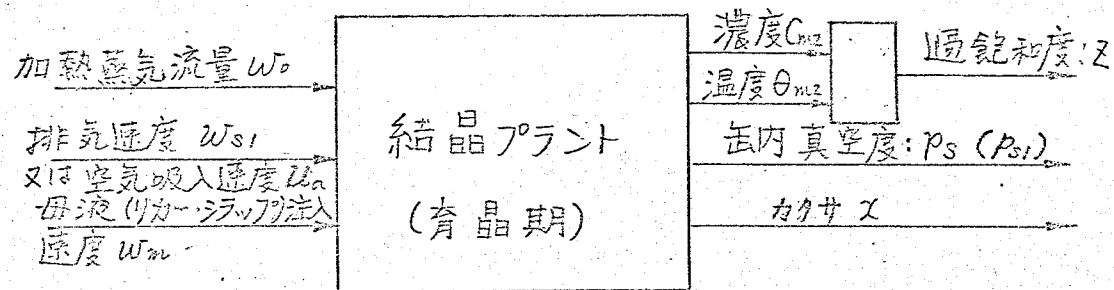


図 4-3-1 育晶期における入出力

4-3-1 育晶期の制御工学的な検討

以下の筆者の研究によれば、育晶期における制御上の特徴は、母液を連続的に注入しながらのゆる煎き上げを行なう点に原因している。またこのときもっとも重要な制御量はカタサであると結論できる。煎き上げは高品質の結晶を得るための操作として、またカタサは晶析プラントの重要な制御量として一般のプロセス制御の場合とくらべて著しい特徴をもっている。よって筆者はこのような特徴がもつ本質的な意義を制御工学的な立場から考察する。

まず煎き上げ操作の意義について考察する。結晶が成長するためには言うまでもなく母液を常に飽和濃度以上に保たなくてはならない。よのためには、はじめから結晶缶を満杯にした上で結晶成長に見合う速度で母液を濃縮するか、もしくははじめからマスクットを少なく煎き上げおき、その上で缶外から新しい母液を注入して溶質分を補給するかどちらかの手段が考えられる。前者の方法では缶内のマスクット量はほとんど変動しないが、後者の方によればマスクットの量は次第に増大し、マスクットの液位は大巾に上昇する。

一方、結晶品質の向上のために結晶プロセスを完全に制御するには、すでに第2章および前節4-2-2(iv)で詳論した通り、過飽和度とカタサの制御が不可欠である。しかし前者の濃縮法はカタサの加速度的な増大を招くうえ、操作量を一つ失うからこれを制御することは不可能であり、その意味で不満足である。すなわち換言すれば、前者の方法はプロセス自由度の系を2系統の制御系で整定しようとするものと考えられるから、これは制御工学的に無理な操業方法であると言わざるを得ない。これに反して後者の方には前者のような不都合さはなく、したがって結晶成長すなわち育晶の手段として適切なものであることが理解できる。(*) この後者の方がかつゆる煎き上げ

(*) この前者の濃縮法は完全回分式プロセスであって、製糖や製塩などの手段として工業的に古くから用いられていたが、近年の回分式結晶プラントは厳密には半回分式プラントであってすべて後者の煎き上げ操作を行なわれる。これによって品質のすぐれた結晶が得られるようになった理由が理解できる。

操作である。この操作を行なうと必然的にマスクットの全容積は結晶容積に比例して増大する結果となる。

つきに育晶期においてカタサをできるだけかたく制御する意義について考察する。(*) カタサという量の重要性は、4-2.2 (V) で詳論した通りであるが、制御の観点からもう一つの重要な意義がある。すなわち、一般にスラリー状になつたマスクットの過飽和度の検出は非常に困難であるから、できるだけ過飽和度制御に依存することのすくなくプロセスに還元したいという要求が当然生れくる。この要求は育晶が進行するにつれてマスクットの結晶容積分率が高まるほど切実なものとなつてくるはずである。ところが幸いなことに、できるだけ固く煎き上げるといふ操業方針がこの要求にも合致していることが分る。すなわち結晶成長のメカニズムを微視的に観察すると、母液中に浮遊する結晶の周囲にはそれぞれ拡散境界層が存在し、この境界層内での濃度は常に平衡飽和濃度に向つて安定化される働きを受けている。マスクットを固く煎くことによつて粒子間距離が接近し、隣接する境界層が接触するくらいになると、粒子間をうめる母液はいずれかの粒子の境界層内に包合され、そして平衡飽和濃度への強制力を受けるに至る。このような状態のマスクットは巨視的に見れば固液両相の平衡状態に近しい状態と見ることもできる。すなわち換言すれば、この場合液相の濃度は常にある平衡濃度に向つて動くポテンシャルの場の支配を受けている形となり、現象的にみれば自己平衡性を保持している状態とすることもできる。上述の考察によつて、マスクットをできるだけ固く煎くという操作の制御工学的な意義が、母液の過飽和度に定値平衡性を与える点にあることが分つた。そして、正確な検出が困難である育晶期の過飽和度を、カタサを固くすることによつてほとんど制御せずに済ませられることが明らかになつた。その反面、カタサの制御の重要性がますます大きくなることは当然である。

なお、カタサに関するさらに具体的な議論は第7章(7-1節)で行なう。

(*) カタサをできるだけかたく制御せねばならぬ、と経験的に言われているが、7-1節において筆者はその科学的な根拠を明らかにした。

4-3-2 基礎式

育晶期における基礎式は次の通りである。ただし、記号の使い方は前節と同じである。(図4-2-2 参照のこと)

マスクットの母液に関する物質収支式は

$$\frac{d}{dt} [(A_l - V_d) \delta_{m_2}] = W_m - j_{mw} - j_{dw} \quad (4-3-1)$$

結晶粒子の成長速度は、前章と同様に

$$\frac{d}{dt} [V_d \delta_d] = j_{dw} \quad (4-3-2)$$

マスクットの母液中に溶解している溶質分についての物質収支式は

$$\frac{d}{dt} [(A_l - V_d) \delta_{m_2} C_{m_2}] = W_m C_{m_1} - j_{dw} \quad (4-3-3)$$

缶内の蒸気空間における物質収支式は、前章と同様に

$$\frac{d}{dt} [A(L_0 - l) \delta_{s_1}] = j_{mw} - W_{s_1} + W_a \quad (4-3-4)$$

マスクット全体の熱収支式は

$$\frac{d}{dt} [A_l \delta_{m_2}' h_{m_2}'] = \theta + W_m h_{m_1} - j_{mh} + j_{dh} \quad (4-3-5)$$

缶外への熱損失項を考慮しなかった理由は前章で述べた通りである。

蒸発熱速度 j_{mh} は

$$j_{mh} = j_{mw} \gamma_{m_2} \quad (4-3-6)$$

ここで蒸発潜熱 γ_{m_2} は母液の蒸発潜熱である。

結晶成長速度 j_{dw} は、前章と同様に、過飽和度 S の関数で

$$j_{dw} = K_s M \Delta d (S - 1) \quad (4-3-7)$$

育晶期におけるカタサについては、結晶容積分率 ϕ_v が 0.4 以上にまで増大するから、前節のような Einstein の式をもはや通用することはできない。濃厚なマスクットについての従来の基礎的研究によると、次に示す Robinson の式がよく適合することを知られており、⁽¹³⁾ 筆者の実験結果もそれを支持している。

$$\alpha = \alpha_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 \phi_v}{1 - k_2 \phi_v} \right\} \quad (4-3-8)$$

こゝで、 α_0 は母液のカタサ (4-2-2(V) 参照のこと)、 ϕ_v は結晶容積分率、 k_1, k_2 は定数である。

マスクットの温度変動は比較的小さいと考えられるから、前節と同様に、飽和濃度 C_{m2}^0 は温度の 1 次関数で表わされるとする。たとえば、筆者の実験に供した蔗糖溶液に於ては⁽¹⁴⁾

$$C_{m2}^0 = 0.6418 + 0.00134 \theta_{m2} \quad (4-3-9)$$

こゝで、 C_{m2}^0 [g-sucrose / g-soln], θ_{m2} [°C] である。

4-3-3 定常特性

育晶期における定常状態とは、母液の過飽和度および温度、釜内真空度が所定の値に保たれている操業状態を意味する。しかし、すでに述べたように、育晶期中期から後半にかけて結晶の容積分率の増大に伴って母液の過飽和度という制御量は次第に重要性を失い、それに代ってマスクットのカタサの占める役割がますます支配的になつてくる。本項では以上のような状況をもとに、各種の定常関係式を導く。

(i) 結晶の定常成長速度

結晶粒子の定常成長速度は前節と同じように扱うことができる。すなわち、一定の過飽和度のもとではリウゆる ΔL 法則が成立するから、結晶の平均粒径 d は (4-2-18) 式によつて

$$\left. \begin{aligned} d &= K_j t + d_0 \\ K_j &= k_j (\bar{z} - 1) \\ &= \frac{K_s M \alpha_s}{3 \delta d \alpha_v} (\bar{z} - 1) \end{aligned} \right\} (4-3-10)$$

ただし、

ここで d_0 は初期粒径で、時間 t の始点のとり方によって任意に定めることができる。つぎに、成長速度 j_{dw} はやはり前節と同じように扱うことができる。

(4-2-20) (4-2-21) 式によつて

$$\left. \begin{aligned} j_{dw} &= \sigma_d \frac{dV_d}{dt} \\ &= \sigma_d \cdot n_{dv} \cdot \frac{d}{dt} (K_j t + d_0)^3 \\ &= K_s M n_{ds} (z-1) (K_j t + d_0)^2 \end{aligned} \right\} (4-3-11)$$

つぎに、この成長速度が定常状態において母液注入速度 W_m と加熱蒸気速度 w_0 などの操作量とのかかる関係にあるかを考察する。基礎式に定常条件をあてはめて書直すと、(4-3-1) 式より、

$$\left(A \frac{dl}{dt} - \frac{dV_d}{dt} \right) \delta_{m2} = W_m - j_{mw} - j_{dw} \quad (4-3-12)$$

同様に (4-3-3) 式は

$$\left(A \frac{dl}{dt} - \frac{dV_d}{dt} \right) \delta_{m2} C_{m2} = W_m C_{m1} - j_{dw} \quad (4-3-13)$$

これらの両式から

$$(1 - C_{m2}) j_{dw} = C_{m2} j_{mw} - (C_{m2} - C_{m1}) W_m \quad (4-3-14)$$

この式の左辺 j_{dw} は (4-3-11) 式で示したように時間と共に増大してゆく量であるから、操作量としての蒸発速度 j_{mw} と母液注入速度 W_m は結晶成長速度に対応して変化せねばならないことを示している。(4-3-14) 式の関係をもう少し明確にするため、 j_{mw} を混合凝縮器の冷却水量 W_{c1} とその水温 θ_{c1} とで表現し直す。(4-1-1) (4-1-3) 式から j_{mw} を求めると

$$j_{mw} = \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} W_{c1} \quad (4-3-15)$$

ゆえに (4-3-14) 式は (4-3-15) 式を用いて

$$(1 - C_{m2}) j_{dw} = \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{91} - C_1 \theta_{c2}} C_{m2} W_{c1} - (C_{m2} - C_{m1}) W_m \quad (4-3-16)$$

この関係式により、結晶成長と操作量との実用的な定常関係を
見出すことができた。

(ii) 液位変動

煎き上げ操作により、マスケット液位がどのように変化するかを考
察する。液位の変動は操作期間の切り換え時点を定めるため
と同時に、動特性のパラメータ変動を検知する上で重要であるから^(*)
シーケンス制御系の設計に不可欠である。しかし液位自体は制御
量ではない。

基礎式 (4-3-3) 式を定常状態を書直し、 $(dV_d/dt) = j_{dw}/\delta_d$
の関係を用いると

$$A \delta_{m2} C_{m2} \frac{dl}{dt} = C_{m1} W_m - \left(1 - \frac{\delta_{m2} C_{m2}}{\delta_d}\right) j_{dw}$$

ゆえに

$$A \frac{dl}{dt} = \frac{C_{m1}}{\delta_{m2} C_{m2}} \cdot W_m - \left(\frac{1}{\delta_{m2} C_{m2}} - \frac{1}{\delta_d}\right) j_{dw} \quad (4-3-17)$$

これが液位変動をあらわす定常関係式である。こゝ結晶成長速
度 j_{dw} は定常状態では外部から操作できる量である^(**) (4-
3-11) 式参照) 一方、母液注入速度 W_m は外部から操作できる量で
あるが、缶内真空度およびマスケットのかたさを指定すれば自ら定
まってくる量である。したがってカタサのプログラム目標値をいかに定
めるかによって母液注入速度 W_m の操作方法が大いに異ってくるこ
とが分った。

(*) 第 7.8 章 参照のこと

(**) 過飽和度が一定という条件にいられているからである。

(iii) 加熱速度

育晶期における加熱速度の定常関係式を誘導する。

育晶期前半のマスクットの状態は起晶期のマスクットと同程度に流動性に富み、カランドリ了加熱面における熱伝達も比較的効率よく行なわれれている。しかし後半に至ると、結晶粒子の容積分率が加速度的に増大し、さらにマスクット総容積も前玉上げによって増加し、かなり液面上昇しているのど、マスクットの缶内循環は悪化し、熱伝達速度は低下する傾向にある。したがって育晶期の加熱速度は全期間を通じて統一的に扱うことは困難であるので、本項では育晶期前半のみについて議論し、育晶期後半については、加熱速度と深い関係にあるカタサの特性と併せて、第6章で述べることにする。

マスクットを単純なスラリー状混合物と考えれば、その総熱量は、

$$A l \delta'_{m2} h'_{m2} = (A l - V_d) \delta_{m2} h_{m2} + V_d \delta_d h_d \quad (4-3-18)$$

この(4-3-18)式を基礎式(4-3-5)に用い、定常条件を考慮すると

$$A \delta'_{m2} h'_{m2} \frac{d l}{d t} + (\delta_d h_d - \delta_{m2} h_{m2}) \frac{d V_d}{d t} = Q + W_m h_{m1} + \dot{j}_{dR} - \dot{j}_{mR} \quad (4-3-19)$$

(4-3-7), (4-3-15), (4-3-16)式を用いて上式をまとめると

$$Q = \left(\frac{h_{m2}}{C_{m2}} - \frac{h_{m1}}{C_{m1}} \right) C_{m1} W_m + \left(h_d - h'_d - \frac{h_{m2}}{C_{m2}} \right) \dot{j}_{dR} + \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} r_{m2} W_{c1} \quad (4-3-20)$$

これが加熱速度 Q に関する定常関係式である。ここで加熱速度 Q は、結晶成長速度 \dot{j}_{dR} の項を含んでいる。そしてこの \dot{j}_{dR} は時間の自乗で増大するから、加熱速度 Q は時間と共に増大せねばならないことを示している。

(*) 第6章において筆者は育晶期後半の伝熱速度を表わす関係式を巨視的な立場から導いた。

(4-3-20) 式の右辺は、第1項が流入した母液を沸点まで加熱し濃度を C_{m2} まで高めるに要する熱量、第2項は晶析に伴う必要熱量、第3項は蒸発に要する熱量である。このうち第3項がもっとも大きいことが数値計算によっても実験によっても明らかである。

さて(4-3-20)式右辺の各項はそれぞれ独立ではなく、(4-3-16)式で示した定常関係式で結ばれているから、(4-3-16)式を代入すると、

$$Q = C_1 \left(\frac{\theta_{c2} - \theta_{c1}}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} \right) \left\{ r_{m2} + \frac{C_{m2}}{1 - C_{m2}} (h_d - h'_d - \frac{h_{m2}}{C_{m2}}) \right\} W_{c1}$$

$$+ \left\{ \left(\frac{h_{m2}}{C_{m2}} - \frac{h_{m1}}{C_{m1}} \right) C_{m1} - \frac{C_{m2} - C_{m1}}{1 - C_{m2}} (h_d - h'_d - \frac{h_{m2}}{C_{m2}}) \right\} W_m \quad (4-3-21)$$

この関係式によって加熱速度 Q 、冷却水量 W_{c1} 、母液注入速度 W_m の間の定常関係が明確になった。これらの3つの変量のうち、 W_m すなわち母液の注入速度は、前項で述べたように、マスクットのカタサのプログラムによって定めるべき性質のものであるから、結局、(4-3-21)式はカタサに従属した加熱速度 Q と冷却水量 W_{c1} との関係を規定していることが明らかになった。

4-3-4 カタサの特性

本項では、育晶期および前、き締め期において一般に採用されている数種類のカタサの操業方式に沿って、カタサの特性を議論する。育晶期のカタサの操業方式には大別して、カタサを一定に保つ方式とカタサを次第に増す方式、の2種類がある。後者の方式は操業の能率化と品質の管理に大きく関係しているのだからこれを7-1でまとめて詳論し、ここでは前者の方式について論じる。つきに前、き締め期のカタサの操業方式は、いわゆる水煎きと煎き

締めの上を含んでゐる。*) したがって煎き締め期におけるカタサの特性は、温水注入に対するマスクットのカタサの過渡的な特性を求めらるる問題に帰着する。

カタサが育晶期におけるもっとも重要な制御量であることの意味はすでに4-3-1で述べた。また、カタサとこの量の特異性については前節4-2-2(V)で指摘した通りである。本項での議論はすでに述べたこれらの知識をもとにして展開することにする。

(i) マスクット容積とカタサの変化

育晶期におけるマスクットの定常条件は、すでに述べた通り、母液の過飽和度および温度が一定に保たれてゐることと意味してあり、この条件の下で成立する操作量相互の定常関係式はすでに4-3-3で求めた。しかしながら、操作量のうちで母液注入速度 U_m はカタサの操業方法に対応して定めるべきものであったから、カタサと母液注入速度との定常条件下における関係を規定することによつてはじめに前項で得た定常関係式が確定する。

育晶期における結晶粒子の容積分率 ϕ_v は0.1~0.4に達し、これに対するカタサ α は基礎式(4-3-8)式で与えることができることが分つてゐる。

$$\alpha = \alpha_0 \left(1 + \frac{k_1 \phi_v}{1 - k_2 \phi_v} \right) \quad (4-3-22)$$

ここで α_0 は母液粘度に相当する量であるが、カタサとこの量の相対的な性質によつてこれを実験定数と与えておく。(4-2(V)参照のこと) k_1 は母液の組成に関係した定数で、化学的に類似した液体の k_1 の値はほぼ等しいことが分つてゐる。 k_2 は結晶粒子が母液

(*) 永煎きとは、育晶期が仕上がったマスクットに温水だけを注入して加熱する操作を言う。また煎き締めとは、すべての注液を断つて加熱する操作を指し、これは一般に永煎き操作の直後に行なわれる。

内で浮遊している最高容積分率の逆数に相当する、とわかれている。(17)

つまり容積分率 ϕ_v は結晶粒子容積 V_d とマスクット容積 Al との比であるから

$$\phi_v = \frac{V_d}{Al} = \frac{n d_v d^3}{Al} \quad (4-3-23)$$

粒子容積 V_d の時間的変化は (4-2-18) 式を用いて

$$V_d = n d_v (K_j t + d_0)^3 \quad (4-3-24)$$

定常状態におけるマスクット容積 Al の変化を求めるため、(4-3-17) 式を用いて

$$A \frac{dl}{dt} = \frac{C_{m1}}{\delta_{m2} C_{m2}} w_m - \left(\frac{1}{\delta_{m2} C_{m2}} - \frac{1}{\delta_d} \right) \delta_d w$$

上式を時間区間 $[t^*, t]$ について積分すれば

$$A(l - l^*) = \frac{C_{m1}}{\delta_{m2} C_{m2}} \int_{t^*}^t w_m dt - \left(\frac{1}{\delta_{m2} C_{m2}} - \frac{1}{\delta_d} \right) \delta_d (V_d - V_d^*)$$

ただし、 l^* , V_d^* はそれぞれ $t = t^*$ における液位および結晶容積の値であり、時刻 t^* ($< t$) は青晶期間中の任意の基準時刻である。ここで $t = t^*$ におけるマスクット容積を、 $Al^* \equiv V_m^*$ とおいて整理すれば

$$Al = V_m^* + \frac{C_{m1}}{\delta_{m2} C_{m2}} \int_{t^*}^t w_m dt - \left(\frac{\delta_d}{\delta_{m2} C_{m2}} - 1 \right) (V_d - V_d^*) \quad (4-3-25)$$

(4-3-23), (4-3-25) 式から結晶容積分率 ϕ_v を求めると

$$\phi_v = \frac{V_d}{V_m^* + \frac{C_{m1}}{\delta_{m2} C_{m2}} \int_{t^*}^t w_m dt - \left(\frac{\delta_d}{\delta_{m2} C_{m2}} - 1 \right) (V_d - V_d^*)} \quad (4-3-26)$$

これは母液注入を行なう時の結晶容積分率をあらわす一般式である。なお、上式の結晶容積 V_d については(4-3-24)式の時間関数を代入すればよりか、そのときは時刻起点を統一するため種入れの瞬間を $t=0$ とせねばならない。

ゆえに母液の注入を行なうときのカタサは(4-3-26)式を(4-3-22)式へ代入することによって求めることができる。以下において、いま述べた各方式に対するカタサと母液注入速度の関係について述べる。

(ii) カタサを一定に保持する場合の特性

育成期間中カタサを一定に保持する操業方式は従来から実操業にとり入れられてきた方式である。この方式の特徴は、マスクットの流動度が一定に保たれる結果、結晶缶内のマスクットの循環が悪化しないこと、および伝熱係数の低下を防ぐことができることである。したがって育成時間を短縮することができる、と言われている。

カタサを一定に保つことは(4-3-22)式から明らかのように、結晶容積分率 ϕ_v を一定値 ϕ_v^* に保つことと等価である。ゆえに、(4-3-23)式を用いて

$$\frac{dV_d}{dt} - \phi_v^* A \frac{dl}{dt} = 0 \quad (4-3-27)$$

この(4-3-27)式に対して(4-3-17)式を適用すると

$$W_m = \frac{1}{C_{m1}} \left(\delta_d + \delta_{m2} C_{m2} \frac{1 - \phi_v^*}{\phi_v^*} \right) \frac{J_{dw}}{\delta_d} \quad (4-3-28)$$

右辺に(4-2-15)式および(4-2-20)式を用いると

$$W_m = \frac{1}{C_{m1}} \left(\delta_d + \delta_{m2} C_{m2} \frac{1 - \phi_v^*}{\phi_v^*} \right) \frac{K_s M (\delta - 1)}{\delta_d} a_d$$

$$= \frac{1}{C_{m1}} \left(\sigma_d + \gamma_{m2} C_{m2} \frac{1 - \phi_v^*}{\phi_v^*} \right) \cdot 3n dr k_j (k_j t + d_0)^2 \quad (4-3-27)$$

(4-3-28), (4-3-29)式がカタサ一定操業における母液注入速度を表わす。すなわち、カタサを一定に保持するには、母液を結晶の成長速度に比例して注入せねばならないこと、換言すれば結晶表面積 a_d に比例して注入せねばならないことが理論上言える。

(iii) 煎き締めを行う場合の特性

煎き締め操作中はマスクットに入る母液などのすべりの注液は断たれているから、あまらかにマスクットの全容積は減少し、液位は低下する。したがって結晶容積濃度は急速に増大し、カタサの急上昇が当然予想できる。煎き締め期間中は育晶期につりのマスクットの定常状態は次第にくずれてゆくが、定常条件の大部分を規定する母液量が相対的に減少しているので、上記の定常条件は満足していると仮定して差支えないと思われる。(なお、この仮定から導いた結果は次章5-1.2 (V)の結果からみて妥当である)

煎き締め開始時刻におけるマスクット容積を V_m^* 、結晶平均粒径を d^* 、結晶全容積を v_d^* 、結晶容積分率を $\phi_v^* = v_d^*/V_m^*$ 、カタサを α^* とする。これらの初期値を用いて煎き締め操作中のカタサを求める。さ2. 煎き締め操作中のマスクット容積 Al は初期値 V_m^* から蒸発量を差し引くことによって求まる。(*)

$$\begin{aligned} Al &= V_m^* - \int_0^t j_{nw} dt \\ &= V_m^* - \int_0^t \frac{(h_0 - 0.6C_1\theta_0 - 0.4C_1\theta_{m2}) W_0}{\gamma_{m2}} dt \quad (4-3-30) \end{aligned}$$

右辺第2項は(4-1.2), (4-1.4)式を用いた。つきに結晶容積 v_d は、初期値 v_d^* から次第に増大してゆくから(4-2.18)式を用いて

(*) 煎き締め時間は通常かなり短いからこの間に結晶化した蔗糖分子の容積変化は無視できる。

$$\begin{aligned}
 V_d &= n d_v (d^* + k_j t)^3 \\
 &= V_d^* \left(1 + \frac{k_j}{d^*} t\right)^3 \quad (4-3-31)
 \end{aligned}$$

時間 t のとり方は (4-3-30) 式の場合と同じである。結晶容積分率 ϕ_v は (4-3-30), (4-3-31) 両式の比を用いて

$$\phi_v = \frac{V_d^* \left(1 + \frac{k_j}{d^*} t\right)^3}{V_m^* - \int_0^t \frac{(R_0 - 0.6 C_1 \theta_0 - 0.4 C_1 \theta_{m2}) W_0}{r_{m2}} dt} \quad (4-3-32)$$

ゆえに煎き締め操作中のカタサ χ の変化は (4-3-32) 式を (4-3-22) 式に代入して次式のように求めることができる。

$$\chi = \chi_0 \left\{ 1 + \frac{R_1 V_d^* \left(1 + \frac{k_j}{d^*} t\right)^3}{V_m^* - \int_0^t \frac{(R_0 - 0.6 C_1 \theta_0 - 0.4 C_1 \theta_{m2}) W_0}{r_{m2}} dt - R_2 V_d^* \left(1 + \frac{k_j}{d^*} t\right)^3} \right\} \quad (4-3-33)$$

これが煎き締め操作にもとづくカタサの上昇変化を示す式である。

(V) 水煎きを行なう場合の特性

水煎き操作は煎き締め期におけるまた別の重要な操作である。この操作は、育晶期を通じて仕上げたマスクットに含まれる偽晶を消失させる目的で行なうことが多く、それと同時にマスクットを排出に適したカタサに調整するために行なうこともある。前者の目的は、差し水によって溶解し母液に還元した偽晶の溶質分を、煎き締め操作によって正常な結晶面へ再び晶出させ、これによって晶析の収率を向上させる点にある。

水煎き操作は比較的短時間に温水を大量に連続的に注入する方法がとられている。したがって操作の目的を考慮すれば、強いて定常条件にこだわる必要はない。大量の連続的な温水注入に

よって母液の過飽和度は低下してゐるから、水煎き操作中の結晶成長速度は無視できるくらい小さいと考えられる。また温水注入速度 w_c にくらべて蒸発速度 j_{mv} は同様に無視できるほど小さいと考えられる。このような考えは一般の操業状況から判断して妥当と思われ、また筆者の実験結果もこれを支持してゐる。(5-1.2 (v) 参照のこと)

水煎き開始時刻を $t=0$ とし、そのときのマスクット容積を V_m^* 、結晶容積を V_d^* 、結晶容積分率を $\phi_v^* (= V_d^*/V_m^*)$ 、カタガを α^* とする。また温水の差し水は w_c [kg/hr] の速度で行はわれ、この差し水によって結晶および偽晶が溶解する速度を j_{dl} とする。水煎き開始後の時刻 t におけるマスクット容積 Al および結晶容積 V_d は

$$Al = V_m^* + \int_0^t w_c dt \quad (4-3-34)$$

$$V_d = V_d^* - \int_0^t j_{dl} dt \quad (4-3-35)$$

ゆえに結晶容積分率 ϕ_v は

$$\phi_v = \frac{V_d - \int_0^t j_{dl} dt}{V_m^* + \int_0^t w_c dt} \quad (4-3-36)$$

となる。ゆえにカタガ α は

$$\alpha = \alpha_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 (V_d^* - \int_0^t j_{dl} dt)}{V_m^* + \int_0^t w_c dt - k_2 (V_d - \int_0^t j_{dl} dt)} \right\} \quad (4-3-37)$$

つきに水煎き終了時刻 t^{**} におけるカタガを求める。水煎き期間中に注入した温水量 V_c および偽晶の溶解量 ΔV_d は

$$V_c = \int_0^{t^{**}} w_c dt, \quad \Delta V_d = \int_0^{t^{**}} j_{dl} dt \quad (4-3-38)$$

であるから、水煎き終了時のカタガ α^{**} は

$$\alpha^{**} = \alpha_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 (v_a^* - \Delta v_a)}{V_m^* + V_c - k_2 (v_a^* - \Delta v_a)} \right\} \quad (4-3-37)$$

水煎王によるカタサの最終的な変化率 α^{**}/α^* を求めると

$$\frac{\alpha^{**}}{\alpha^*} = \frac{1 + \frac{k_1 (v_a^* - \Delta v_a)}{V_m^* + V_c - k_2 (v_a^* - \Delta v_a)}}{1 + \frac{k_1 v_a^*}{V_m^* - k_2 v_a^*}} \quad (4-3-40)$$

上式右辺の分母および分子の第2項目は通常「すれも1より充分大きい」と考えられるから

$$\frac{\alpha^{**}}{\alpha^*} = \frac{(v_a^* - \Delta v_a)(V_m^* - k_2 v_a^*)}{v_a^* \{ V_m^* + V_c - k_2 (v_a^* - \Delta v_a) \}} \quad (4-3-41)$$

カタサの変化率 α^{**}/α^* は偽晶の発生量によって左右されるが、次章で述べる筆者の蔗糖用結晶缶による実験では $\frac{1}{2} \sim \frac{1}{2.5}$ の範囲であった。

4-3-5 動特性

育晶期における制御量は過飽和度、缶内真空度、カタサの3つである。したがって育晶期の動特性はこれらの3つの制御量についてそれぞれ求めねばならぬが、このうち缶内真空度の動特性は操業の全期間を通じて同一に論じるこゝができるので、4-1-2の結果をそのまま用いることができる。すなわち4-3-1で詳論したように、母液の過飽和度という制御量の重要性は育晶が進むにつれてだんだんと薄らぐ傾向にある。しかしこゝで述べる過飽和度の特性はもちろん育晶期全般に亘つ

適用できるものである。カタサの動特性についての重要性はすでに幾度も強調した通りである。

- (i) 過飽和度の動特性
過飽和度 Z は定義により

$$Z = \frac{C_{m2}(1 - \bar{C}_{m2}^{\circ})}{\bar{C}_{m2}^{\circ}(1 - C_{m2})} \quad (4-3-42)$$

ここで、 C_{m2} は母液濃度、 \bar{C}_{m2}° はその母液濃度に対応する飽和濃度である。ここで母液濃度 C_{m2} は母液全体の平均値をとるものとする。(4-3-42)式を微小変域内で線形化するため、定常点近傍で展開すると、(4-2-33)式と同様に

$$\Delta Z = \frac{1 - \bar{C}_{m2}^{\circ}}{\bar{C}_{m2}^{\circ}(1 - \bar{C}_{m2}^{\circ})^2} \Delta C_{m2} - \frac{\bar{C}_{m2}}{(\bar{C}_{m2}^{\circ})(1 - \bar{C}_{m2}^{\circ})} \Delta \bar{C}_{m2}^{\circ} \quad (4-3-43)$$

上式右辺の ΔC_{m2} および $\Delta \bar{C}_{m2}^{\circ}$ は、(4-1-30)式および基礎式(4-3-1)、(4-3-3)、(4-3-5)式を用いることによって、加熱蒸気速度 W_0 、母液注入速度 W_m 、および缶内真空度 p_s の各操作量で表現することができる。(この誘導については附録(4-4)参照のこと) その結果、求むべき過飽和度の動特性は

$$\Delta Z = \frac{\Delta W_0}{T_{w_0} S} - \frac{\Delta W_m}{T_{w_m} S} - \frac{k_{ps}}{1 + \tau S} \Delta p_s \quad (4-3-44)$$

ただし

$$T_{w_0} = \frac{\bar{C}_{m2}^{\circ}(1 - \bar{C}_{m2}^{\circ})^2 \gamma_{m2} (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \{ \bar{\gamma}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}^{\circ}) k_{rm} \}}{k_q (1 - \bar{C}_{m2}^{\circ})}$$

$$T_{wm} = \frac{\bar{C}_{m2} (1 - \bar{C}_{m2})^2 r_{m2} (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \{ \bar{\delta}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) k_{sm} \}}{(r_{m2} - C_{m1} r_{m2} - f_{m1})(1 - \bar{C}_{m2})}$$

$$K_{ps} = \frac{\bar{C}_{m2} k_{co} k_{op}}{(\bar{C}_{m2}^0)^2 (1 - \bar{C}_{m2})}$$

また、 w_0 : 加熱蒸気速度 [kg/hr]、 w_m : 母液注入速度 [kg/hr]、 p_s : 缶内真空度 [kg/m², または mm Hg] とする。時定数 T の値は表4-1-2に示した通りである。この(4-3-44)式が過飽和度の動力特性の式であり、これは起晶期の動力特性(4-2-34)式と類似している。(4-3-44)式は3つの入力項を持っており、加熱蒸気速度 w_0 と母液注入速度 w_m に関しては積分性があり、また缶内真空度に関しては1次おくれ特性があらわれている。第8章の制御系の設計において詳述するように、操作量のうち母液注入速度 w_m はカタサを主に操作すべき量であり、過飽和度に対する主たる操作量は加熱蒸気速度 w_0 でなければならぬ。本章4-2-32で指適したように、缶内真空度はマスクット温度を制御すべき唯一の操作量であるから、これを過飽和度の主たる操作量として用いることは操作上避けなければならない。制御量と操作量との共役な対応関係は第8章においてまとめて詳論する。

(ii) カタサの動力特性

カタサ x は基礎式(4-3-22)式で表わし得ることはすでに述べた。

$$x = x_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 \phi_v}{1 - k_2 \phi_v} \right\}$$

上式を微小変域の関係式に変形するため定常的な結晶容積分率 $\bar{\phi}_v$ 近傍で展開すれば、

$$\Delta X = \frac{k_1 x_0}{(1 - k_2 \bar{\phi}_v)^2} \cdot \Delta \phi_v \quad (4-3-45)$$

こゝで母液粘度に相当する項 x_0 の変動がカタサ X に及ぼす影響は容積分率 ϕ_v の変化に比べてきわめて小さいことか分っているから、 x_0 は定数と見做した。こゝで、容積分率 ϕ_v の微小変動値を求める。定義により

$$\phi_v = \frac{V_d}{A\bar{l}}$$

$$\therefore \Delta \phi_v = \frac{1}{(A\bar{l})^2} (A\bar{l} \cdot \Delta V_d - \bar{V}_d \cdot A \cdot \Delta \bar{l}) \quad (4-3-46)$$

上式にもとづいて、まず右辺第1項目 ΔV_d の特性をしらべる。基礎式 (4-3-1), (4-3-2) 式より

$$\delta_{m2} S (A \Delta \bar{l} - \Delta V_d) = \Delta W_m - \Delta j_{mv} - \delta_d S \Delta V_d \quad (4-3-47)$$

(4-3-3) 式より

$$\delta_{m2} S \left\{ (A\bar{l} - \bar{V}_d) \Delta C_{m2} + \bar{C}_{m2} (A \Delta \bar{l} - \Delta V_d) \right\} = C_{m1} \Delta W_m - \delta_d S \Delta V_d \quad (4-3-48)$$

(4-3-5) 式より

$$\delta'_{m2} k'_{m2} A S \Delta \bar{l} = \Delta Q + k_{m1} \Delta W_m + k'_d \delta_d S \Delta V_d - \gamma_{m2} \Delta j_{mv} \quad (4-3-49)$$

また (4-3-2) 式に對し (4-2-16) (4-2-17) 式の関係を用いると

$$\begin{aligned} \bar{j}_{dv} &= \frac{d}{dt} [\delta_d V_d] \\ &= \delta_d n d_r \cdot 3d^2 k_j (z-1) \end{aligned}$$

$$\therefore \Delta V_d = \frac{n d_r \cdot 3d^2 k_j}{S} \Delta z = \frac{n d_r \cdot 3d^2 k_j}{C_{m2} \cdot S} \Delta C_{m2} \quad (4-3-50)$$

以上の3つの関係式、(4-3-47)~(4-3-49)式、から Δj_{m2} , Δl を消去しさらに(4-3-50)式の関係を入れておけば

$$(F_1 S + F_2) S \Delta v_d = \Delta Q - F_3 \Delta W_m \quad (4-3-51)$$

ただし

$$F_1 = (A\bar{v} - \bar{v}_d) (\delta_{m2} \gamma_{m2} - \delta'_{m2} h'_{m2}) / 32 \alpha v \bar{d}^2 \rho_j \bar{z} \quad [\text{Kcal} \cdot \text{hr} / \text{m}^3]$$

$$F_2 = \frac{(\delta_d - \delta_{m2} \bar{c}_{m2}) (\delta_{m2} \gamma_{m2} - \delta'_{m2} h'_{m2})}{\delta_{m2} \bar{c}_{m2}} + (h'_d \delta_d - \delta_{m2} \gamma_{m2} + \delta_d \gamma_{m2}) \quad [\text{Kcal} / \text{m}^3]$$

$$F_3 = (\gamma_{m2} - h_{m1}) - \frac{(\delta_{m2} \gamma_{m2} - \delta'_{m2} h'_{m2}) c_{m1}}{\delta_{m2} \bar{c}_{m2}} \quad [\text{Kcal} / \text{kg}]$$

つきに(4-3-46)式右辺の第2項目 Δl の特性は(4-3-51)式と(4-3-47)式と(4-3-49)式と連立させて解けば得られる。すなわち

$$AF_4 (F_1 S + F_2) S \Delta l = \{ F_3 F_5 + F_6 (F_1 S + F_2) \} \Delta W_m - \{ F_5 + F_1 S + F_2 \} \Delta Q \quad (4-3-52)$$

ただし

$$F_4 = (\delta_{m2} \gamma_{m2} - \delta'_{m2} h'_{m2}) \quad [\text{Kcal} / \text{m}]$$

$$F_5 = h'_d \delta_d - \delta_{m2} \gamma_{m2} + \delta_d \gamma_{m2} \quad [\text{Kcal} / \text{m}^3]$$

$$F_6 = \gamma_{m2} - h_{m1} \quad [\text{Kcal} / \text{kg}]$$

F_1, F_2, F_3 は(4-3-51)式に示した通りである。

さて、こゝで得た(4-3-51)式、(4-3-52)式の関係と(4-3-46)式に代入し、さらにこの結果を(4-3-45)式に用いおけば、求むべきカタガの動特性の式が得られる。こゝで、導入した定数、 $F_1 \sim F_6$ 、を吟味し一般に用いられる標準的な真空結晶缶の規模と操業条件を考慮して妥当な近似計算を行なった。(附録(4-5)参照のこと) この結果

$$\Delta x = \frac{1}{(1 + \tau S) S} \{ k_1 \Delta Q - k_2 \Delta W_m \} \quad (4-3-53)$$

こゝで時定数 τ の値は附録(4-5)に示したように、かなり大きい

場合があるのび次式の近似を行なうと差支えない場合もある。

$$\Delta X = \frac{1}{\tau S^2} \left\{ K_1 \Delta Q - K_2 \Delta W_m \right\} \quad (4-3-54)$$

$$\Delta X = \frac{1}{S} \left\{ K_1 \Delta Q - K_2 \Delta W_m \right\} \quad (4-3-55)$$

ただし, $\tau = \frac{F_1}{F_2}$ [hr]

$$K_1 = \frac{k_1 \alpha_0}{F_2 (A\bar{L})^2 (1 - k_2 \bar{\phi}_v)^2} \left\{ A\bar{L} + \frac{\bar{V}_a (F_2 - F_5)}{F_4} \right\} \quad [\text{kcal}^{-1}]$$

$$K_2 = \frac{k_1 \alpha_0}{F_2 (A\bar{L})^2 (1 - k_2 \bar{\phi}_v)^2} \left\{ A\bar{L} F_3 + \frac{\bar{V}_a (F_3 F_5 + F_2 F_6)}{F_4} \right\} \quad [\text{kg}^{-1}]$$

(4-3-53)式ないしは(4-3-55)式が育晶期におけるカタサの動特性の式である。この式で明らかたように加熱速度 θ と母液注入速度 W_m の2つの操作入力に対するカタサの伝達特性は積分性をもった1次おくれ特性を有している。またカタサに対する2つの操作量の感度すなわちプロセス感度は、次章の実験値からも分るようにほぼ同じ程度であるから、カタサの主たる操作量(母液注入速度 W_m)の操作と同程度に加熱蒸気速度の操作が影響する現象が見られる。これと同じことが(4-3-44)式に示した過飽和度の動特性の場合についても成立している。なお次節4-4で育晶期における回分式真空結晶釜の動特性はカタサと過飽和度かたかいに強く相互干渉し合っていることが明確になっている。

また、このような動特性をもつカタサを安定に制御するには、実際問題、調節器には微分特性を含ませるのが望ましい。

4-4 特性の総括

前節までに、回分式真空結晶缶の特性を各操作期間別に議論してきた。本節ではこのようにして得られた特性式のうちで、回分式真空結晶缶の制御系設計に直接関係のある特性式を抽出し総括してさらに吟味を行なう。そこで、本節では制御系の設計に際しての便利のために、各制御量と操作量ごとに定常特性と動特性を分けて記す。また、さらに制御工学的な有用性を考慮して、動特性についての詳細なブロック線図を提示する。

4-4-1 定常特性

本論文で意味する回分式真空結晶缶の定常状態とは、以下の3つの状態量が定常的、すなわち時間に関係なく一定の値に保たれてゐる状態を言う。

1. 缶内真空度 (p_s) が定常的、
2. 母液温度 (θ_{m2}) が定常的、
3. 母液の過飽和度 (Z) が定常的。^(*)

回分式真空結晶缶の制御系設計に必要で直接関係のある定常特性は、育晶所要時間と特性変動に関係の深い結晶成長速度、煎き上げ操作とシーケンス制御の基礎となるマスクット液位の変化、3つの操作量の定常値を定めるうえで代表となる蒸気加熱速度、プログラム制御を施すべき制御量のカタサの変化、である。そしてこれらの定常特性が明確であれば、定常状態における制御量と操作量の間関係式は一意的に充分決定できる。そこで以下にこれらの定常特性を列記する。

(i) 結晶の成長速度と育晶所要時間

起晶期の初頭、すなわち種入れ直後は結晶種およびマスクットはもともと安定でなく、また育晶期の終端近くでは一般に過飽和度が低下し、マスクットの循環性も悪化している。このような時期を除く大部分の結晶成長期

(*) このうち、2と3の条件から必然的に母液濃度 (C_{m2}) も一定になる。さらに附随的に、母液比重量 (Y_{m2})、蒸弁の潜熱 (r_{m2})、結晶の成長速度係数 (K_s)、結晶化エンタルピー (h_d)、結晶の比重量 (Y_d) などとも一定になる。この他に特性解析において定常性を仮定したものは、混合凝縮器の冷却水流入温度 (θ_{c1})、温水注入温度 (θ_c)、注入母液温度 (θ_{m1})、注入母液濃度 (C_{m1})、加熱蒸気の温度 (θ_0) および圧力 (P_{s0}) であり、状態量の物性値では、結晶の比熱、母液の粘度、などである。

間では、結晶がいわゆる ΔL 法則に従って成長すること、すなわち結晶の粒径 d が次の (4-2.18) 式のように時間に比例して成長すること、を 4-2.2 項で指摘した。

$$d = K_j t + d_0$$

ただし

$$K_j = \frac{K_s M \alpha_s}{3 \alpha_v \gamma_d} (Z-1) \quad (4-2.18)^*$$

アスキット中に含まれる結晶の全容積 V_d は

$$\begin{aligned} V_d &= N \alpha_v d^3 \\ &= N \alpha_v (K_j t + d_0)^3 \end{aligned} \quad (4-2.16)$$

したがって結晶 (重量) 成長速度 j_{dw} は

$$j_{dw} = N \alpha_s K_s M (Z-1) d^2 \quad (4-2.15)$$

$$= 3 \gamma_d N \alpha_v K_j (K_j t + d_0)^2 \quad (4-2.20)$$

以上の4式が定常状態における結晶の粒径および成長速度である。これらの関係式を用いるには、過飽和度 Z 、攪拌係数 M および速度係数 K_s などの定常値を与えなければならぬ。

(4-2.19) 式をもとにして育晶の所要時間を求めることができる。いま、粒径 d_1 の結晶を d_2 まで成長させるには、母液が定常状態にある限り、次式で所要時間 t が定まる。

$$t = \frac{1}{K_j} (d_2 - d_1) \quad (4-2.19)$$

結晶の成長過程は母液のちまうとした状態の変化、たとえば不純物の微量な含有などに敏感に左右されるから、上式で計算された所有時間のこのための誤差は止むを得ない。さてこの式によって得られる利点は、操業の所要時間をあらかじめ見積ることができることのほかに、下記の意味で理想的な最短操業時間を与えることができる点にある。すなわち、実際の現場における結晶缶操業は

(*) 式番号はもとの本文のまま再掲する。ただし、多少の変形を行なったものには式番号に () をつけて示す。

各種の外乱を受けやすく、また筆者の経験によると手動操業の場合は作業者の個性的な方法によって、どうしても操業時間が延長され勝ちである。そこで、結晶缶の操業時間を短縮しようとする時、合理的な目標となる育晶時間の理想的な基準値を(4-2-19)式で与えることができる。なぜなら結晶の成長と仕上り品質を考慮した最適な結晶成長係数 K_j をあらかじめ用いれば、この式で算出された育晶時間は、一つの理想的最短時間になるからである。

(ii) 結晶成長速度を含む定常関係式

操作量間の定常関係式に結晶成長速度 j_{dw} が含まれるものを以下にまとめる。まず起晶期では、(4-2-14)式に

$W_{s1} - W_a = j_{mw}$ の関係を用いると

$$j_{mw} - W_c = \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} j_{dw} \quad (4-2.14)'$$

つぎに、育晶期に入ると

$$j_{mw} - \frac{C_{m2} - C_{m1}}{C_{m2}} W_m = \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} j_{dw} \quad (4-3.14)'$$

この両式はいずれも、結晶が定常状態で成長する時のマスキットの溶媒すなわち水に関する収支式である。

左辺の第1項 j_{mw} すなわち蒸発速度は混合凝縮器の冷却水量 W_{c1} との間に次の関係がある。

$$j_{mw} = \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} W_{c1} \quad (4-3.15)$$

これを前の2式に代入すると操作量間の関係式を得る。

すなわち起晶期では

$$\frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} W_{c1} - W_c = \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} j_{dw} \quad (4-2.14)''$$

育晶期では

$$\frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} W_{c1} - \frac{C_{m2} - C_{m1}}{C_{m2}} W_m = \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} j_{dw} \quad (4-3.14)''$$

成長速度 j_{dw} は、(4-2.20) 式によって、時間 t の 2 乗に比例して増大してゆくから、上式の左辺の各操作量もこれに応じて変化しなければならないことが分る。

(iii) 液位の変化を含む定常関係式

マスクット液位とその変化速度は回分式真空結晶缶の制御の面から考えてあまり重要でない量と思われがちであった。それは、液位 l とりょう量が今までは起晶期においても育晶期においても、熟練作業者による全くの、手動操業の際の単に操業期間の切換え信号として測定されているからであった。したがってこれを回分操業の自動化という面から考えると、液位は準備期における母液仕込み量の検出、排出期におけるマスクットの残余量の検出など、シーケンス制御の重要な切換え信号としての役割りを果たすことができる量である。さらに、液位はこれによって缶内マスクットの全容積を検出することができるから、後章で取扱う適応制御系のプロセス特性検知信号として効果的な量である。

起晶期における液位変動は、いわゆる煎き上げ操作を伴わないから、下式のように結晶の成長速度とだけ関連をもっている。

$$\frac{\Delta l}{l_0} = \left(\frac{\gamma_d}{\gamma_{m2} C_{m2}} - 1 \right) \frac{\Delta V_a}{V_m} \quad (4-2.24)$$

起晶期全般に亘る液位変動率 ($\Delta l/l_0$) はせいぜい 5-6% 程度であるから、液位はほとんど変動しないと見なすことができる場合が多い。

これに反し、育晶期の液位変動は煎き上げ操作をそのまま反映して、かなり大きい。すなわち

$$A \frac{dl}{dt} = \frac{C_{m1}}{\gamma_{m2} C_{m2}} W_m - \left(\frac{1}{\gamma \cdot C_{m2}} - \frac{1}{\gamma_d} \right) j_{dw} \quad (4-3.17)$$

右辺の第 2 項は時間定まる量であるから、液位変動は母液の注入速度 W_m に支配されていることが分る。上

式の積分形は

$$At = V_m^* + \frac{C_{m1}}{\gamma_{m2} C_{m2}} \int_{t^*}^t W_{ind} dt - \left(\frac{r_d}{\gamma_{m2} C_{m2}} - 1 \right) (V_d - V_d^*) \quad (4-325)$$

煎き締め期における液位変動は、(4-320)式および(4-324)式で与えることができるが、厳密には定常関係式と見なすことはできない。

(IV) 加熱速度を含む定常関係式

加熱源としての蒸気いわゆるプロセス蒸気は、一般に工場全体の共用施設^(*)としての水蒸気ボイラーから供給されている。そして工場内の蒸気配分は全工場の生産計画にしたがっていわゆるシステム工学的な立場で適正に配分消費することが要求されている。したがって、結晶缶工程での蒸気消費はかなりの拘束を受けながらも計画的に行なわれねばならない。ここで提示する加熱速度を含む定常関係式はいずれも工場全体の最適操業問題の基礎となる重要な関係式である。

まず起晶期においては

$$Q = \left(h_d - \frac{h_{m2}}{C_{m2}} \right) j_{dw} + \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} \gamma_{m2} W_{c1} - h_c W_c \quad (4-228)$$

ここで加熱速度 Q を加熱蒸気速度 W_c であらわすには

$$Q = \left\{ h_0 - 0.6 C_1 \theta_0 - 0.4 C_1 \theta_{m2} \right\} W_c \quad (4-229)$$

を用いれば実用上差支えない。

つぎに、育晶期においては

$$Q = \left(\frac{h_{m2}}{C_{m2}} - \frac{h_{m1}}{C_{m1}} \right) C_{m1} W_{in} + \left(h_d - h_d' - \frac{h_{m2}}{C_{m2}} \right) j_{dw} + \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} \gamma_{m2} W_{c1} \quad (4-320)$$

または

$$Q = C_1 \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1})}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} \left\{ \gamma_{m2} + \frac{C_{m2}}{1 - C_{m2}} \left(h_d - h_d' - \frac{h_{m2}}{C_{m2}} \right) \right\} W_{c1}$$

(*) utility の意。

$$+ \left\{ \left(\frac{h_{m2}}{C_{m2}} - \frac{h_{m1}}{C_{m1}} \right) C_{m1} - \frac{C_{m2} - C_{m1}}{1 - C_{m2}} (h_d - h_d' - \frac{h_{m2}}{C_{m2}}) \right\} W_{m1} \quad (4-3.21)$$

ここで加熱速度 Q は冷却水流量 W_c と母液注入速度 W_m の関数である。このうち母液注入速度 W_m は、マスケットのカタサの計画的なプログラムに従って他の操作量とは独自に変化する場合が多い。

加熱速度 Q と加熱蒸気速度 W_0 との関係は起晶期の場合と同様に

$$Q = (h_0 - 0.6C_0\theta_0 - 0.4C_0\theta_{m2}) W_0 \quad (4-2.27)$$

であらわすことができる。この関係式はなにかば経験式をもとに導いたものであるが、実用上充分の精度を保って成立することが分っている。ただし、この関係式は良好なマスケット循環のもとで導かれたものであるから育晶期後半以降においては成立しにくいと思われる。

(V) カタサの変化

マスケットのカタサをあらわす基礎式は、

$$\chi = \chi_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 \phi_r}{1 - k_2 \phi_r} \right\} \quad (4-3.4)$$

起晶期においては結晶容積分率 ϕ_r が 0.1 以下であるからこの時のカタサは上式の近似式

$$\chi = \chi_0 (1 + k_x \phi_r)$$

を用いれば充分である。

さて、起晶期の定常状態におけるカタサの変化は、

$$\chi = \chi_0 \left\{ 1 + k_x \frac{n_{dr}}{V_m} (K_j t + d_0)^3 \right\} \quad (4-2.31)$$

すなわち、カタサ χ は定常条件下では時間の 3 乗に比例して増大してゆく。

育晶期のカタサを一般的に表現すると相当複雑である。すなわち結晶容積分率 ϕ_r は

$$\phi_v = \frac{V_m^* + \frac{C_{m1}}{r_{m2} C_{m2}} \int_{t^*}^+ U_{mdt} - \left(\frac{r_d}{r_{m2} C_{m2}} - 1 \right) (V_d - V_d^*)}{V_m^*} \quad (4-3-26)$$

で与えることができるから、この値を(4-3-8)式に代入することによってカタサ χ の変化を知ることができる。育晶期のカタサは起晶期のそれとは異なり、変化は大きく、また操作量 W_m を含んでいるから母液注入の仕方によって自由にカタサを制御できることを明らかにした。そこで次の3つの場合を示した。まず、カタサを一定値に制御する場合は母液の注入速度 W_m は

$$W_m = \frac{1}{C_{m1}} (r_d + r_{m2} C_{m2} \frac{1 - \phi_v^*}{\phi_v^*}) \cdot 3M \alpha_v K_j (K_j t + d_0)^3 \quad (4-3-29)$$

次に、煎き締め操作すなわち母液の注入を停止し加熱をつづける操作を行なったときのカタサの変化は次式で表わすことができる。

$$\chi = \chi_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 V_d^* \left(1 + \frac{K_j}{d^*} t \right)^3}{V_m^* - \int_0^t \frac{(h_0 - 0.6\theta_0 - 0.4\theta_{m2}) W_0}{r_{m2}} dt - k_2 V_d^* \left(1 + \frac{K_j}{d^*} t \right)^3} \right\} \quad (4-3-30)$$

ここで時刻 t のとり方は煎き締め開始の瞬間を $t=0$ とする。上式に見られるように、煎き締めを行なうとカタサ χ は非常に急激に増大することが分った。さて、最後に水煎き操作を行なった時のカタサは

$$\chi = \chi_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 (V_d^* - \int_0^t j_{ae} dt)}{V_m^* + \int_0^t W_e dt - k_2 (V_d^* - \int_0^t j_{ae} dt)} \right\} \quad (4-3-31)$$

このようにカタサは急激に低下することが分る。ここで時刻 t のとり方は、煎き締め操作と同様に、水煎き開始時すなわち温水注入開始時を $t=0$ としてある。

(4-3-29)、(4-3-30)式で示したカタサの変化はいずれも煎き締め期におけるカタサの調整操作に相当しており、シーケンス制御の切り換え信号を定める際の重要な設計資料を与えている。

4-4.2 動特性

すでに3章で議論したように、時間に依存しない伝達関数は、完全に定常状態が実現できる連続式プロセスについてのみ定義できる。これに反して回分式および半回分式プロセスには必ず非定常な状態量がいくつか含まれているから、厳密な意味での動特性は定義できないと考えられる。しかしたとえば本題の回分式真空結晶缶における液位や結晶容積などは制御量の過渡的な応答時間内ではほとんど変化しないと見なし得るほど比較的緩慢にしか変動しないから、回分式プロセスの動特性はある程度の近似を行えば実際に意義のある伝達関数で表現することができる。

本項では沸騰プロセスの動特性を基礎に、上述の線に沿って回分式真空結晶缶の3つの制御量、缶内真空度 p_s 、過飽和度 Σ 、カタサ α の動特性をまとめる。さらに制御系の設計に有用な全体の動特性のマトリクス表示式を示す。

(i) 缶内真空度

沸騰中の液体の温度は加熱速度とはほとんど関係なく、その気相側全圧によって定まることが分った。したがって缶内真空度 p_s の制御は母液またはマスクットの温度 θ_{m2} をその沸騰点に保つ目的をもっている。

缶内真空度を制御する操作量として2種類考えられる。その一つは混合凝縮器の冷却水流量を操作する方法であり、他の一つは混合凝縮器を操作せずに、缶内に直接外気を吸入する方法である。後者の方法は単に缶内の空気分圧を変えて全圧を操作するやり方であるが、この方が前者の方法に比べて応答速度も早く、しかも缶内の状態をほとんど乱さないという点から筆者の推奨するところである。

混合凝縮器を操作部としたときの缶内真空度の動特性は(4-1.18)式で与えた。

$$\Delta p_{s1} = \frac{-\tau_b(1 + \tau_0 S)}{\tau_a(1 + \frac{\tau_0}{\tau_a} S)} \Delta W_{c1} \quad (4-1.18)$$

ここで係数 τ_0 、 τ_a 、 τ_b は(4-1.18)式に示した定数である。(4-1.17)式の伝達関数は、冷却水流量の変化 ΔW_{c1} に対する缶内真空度の応答が一種の位相進みをもっている事を示している。

次に、操作量として外気吸込みを用いたときの缶内真空度の応答は(4-1.22)式で示した。

$$\Delta p_s = \frac{\frac{\bar{p}_a}{F - \bar{u}_a}}{1 + \frac{V_s}{F - \bar{u}_a} S} \cdot \Delta u_a \quad (4-1.22)$$

このように、吸気に対する缶内真空度の応答は1次おくれ特性をもっている事が分かった。ただし、ここで缶内真空度 p_s は、蒸気分圧 p_{s1} と空気分圧 p_a との和である。

$$p_s = p_{s1} + p_a$$

また、(4-1.22)式における時定数の値 $V_s / (F - \bar{u}_a)$ には外気吸込みの定常速度 \bar{u}_a が含まれているから、吸込みの方法によっては上下非対称な伝達特性を示すことが分かった。

(ii) 母液またはマスクットの温度

真空結晶缶の母液またはマスクットの温度はその缶内真空度に対応した飽和温度すなわち沸点に相当しているから、その温度特性は缶内真空度のみ依存しており、加熱速度にはほとんど関係しない。このようなプロセスを沸騰プロセスと名付けて4-1.3項でもとめて議論した。

缶内真空度 p_s と母液またはマスクットの温度 θ_{m2} との伝達特性は、圧力降下に対しては(4-1.30)式で与えた。

$$\Delta \theta_{m2} = \frac{k_{op}}{1 + \frac{C_m}{\bar{a} \beta e^{B(\bar{\theta}_{m2} - \theta_{m2})}} S} \Delta p_s \quad (4-1.30)$$

この1次おくれ特性の時定数には定常加熱速度 \bar{Q} が含まれている。もし缶内真空度を下げる操作を行って液の沸点を下げようとするとき、その応答速度すなわち液温の下がり速度は加熱速度 \bar{Q} を大きくすればするほど早くなる、という逆説的な現象を示すことが分かった。このような現象は筆者の実験によっても確かめられている。

次に缶内真空度を下げることによって、すなわち圧力上昇によってマスクットの沸点を上げようとするときは、一時的に沸騰現象が止んで通常の伝熱プロセスと同様の特性を示す。このときの特性は周知の様に1次おくれ特性であり、その時定数は C_m / α (α は熱伝達率) である。しかし液温が上昇して再び沸点に近づき、沸騰現象を起しはじめるとその温度曲線は沸点で頭打ちとなり飽和してしまふことは明らかである。

さて、以上の両方の場合をまとめて図示したのが図4-1.8で、このような非対象特性の時定数を表4-1.2でまとめた。

(iii) 過飽和度

過飽和度は一般の晶析プロセスの制御量のうちでもっとも重要で基本的である。過飽和度 \bar{z} は次式で定義されている。

$$\bar{z} = \frac{C_{m2}(1-C_{m2}^0)}{C_{m2}^0(1-C_{m2})} \quad (4-1.31)$$

飽和濃度 C_{m2}^0 は母液温度 θ_{m2} の関数であり、濃度 C_{m2} は加熱速度と注液速度 τ に左右されて定まるから、結局過飽和度の特性はすべての操作量の関数として与えられることが分った。過飽和度は起晶期と育晶期において制御されている。

まず、起晶期における過飽和度の動特性は(4-2.34)式の伝達関数で示した。

$$\Delta \bar{z} = \frac{1}{T_{w0}S} \Delta W_0 - \frac{1}{T_{wc}S} \Delta W_c - \frac{K_{ps}}{1+\tau S} \Delta p_s \quad (4-2.34)$$

過飽和度の入力項としては上式に示した3つの項、加熱蒸気速度 W_0 、温水注入速度 W_c 、缶内真空度 p_s がある。このうち缶内真空度 p_s の操作量として筆者が推奨する外気吸入法を採用すれば、(4-1.22)式によりその伝達関数は

$$\Delta p_s = \frac{t_c}{1+\tau' S} \Delta U_a \quad (4-1.22)'$$

$$t_c = V_s / (F - \bar{u}_a), \quad t_c = \bar{p}_a / (F - \bar{u}_a)$$

ゆえに、この方法による過飽和度の伝達関数は

$$\Delta \bar{z} = \frac{1}{T_{w0}S} \Delta W_0 - \frac{1}{T_{wc}S} \Delta W_c - \frac{K_{ps} \cdot t_c}{(1+\tau S)(1+\tau' S)} \Delta U_a$$

つぎに育晶期における伝達関数は(4-3.44)式で示した。

$$\Delta \bar{z} = \frac{1}{T_{w0}S} \Delta W_0 - \frac{1}{T_{wm}S} \Delta W_m - \frac{K_{ps}}{1+\tau S} \Delta p_s \quad (4-3.44)$$

この伝達関数を起晶期のそれ、すなわち(4-2.34)式と比較すると、右辺の才2項が異っているだけである。すなわち当然のことながら(4-3.44)式では温水注入の代りに母液注入速度 W_m が操作量となっている。

起晶期および育晶期のいずれの場合にも、過飽和度の制御に対する主たる

操作量は加熱蒸気速度 W_0 である。その他の操作量と制御量との対応関係はのちの制御系の設計において詳しく考察する。

(IV) カタサ

カタサの基礎式は、起晶期においては

$$X = X_0 (1 + k_1 \phi_0) \quad (4-2.7)$$

育晶期においては

$$X = X_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 \phi_0}{1 + k_2 \phi_0} \right\} \quad (4-3.8)$$

であらわすことができる。起晶期におけるカタサは検出されるだけで制御されておらず、育晶期に入ってから初めて制御されるから、カタサの動特性は育晶期だけについて考えれば充分である。

育晶期におけるカタサの動特性は(4-3.53)式または(4-3.54)式であらわすことができる。そのうち(4-3.53)式は

$$\Delta X = \frac{1}{(1 + \tau S) S} \{ K_1 \Delta Q - K_2 \Delta W_m \} \quad (4-3.54)$$

この伝達関数は、カタサが加熱速度 Q と母液注入速度 W_m に対して積分性をもった1次おくれ特性を有していることを示している。また、カタサに対する主たる操作量は母液注入速度 W_m であることも指摘した。

(V) 動特性のマトリクス表示

すでに述べた通り、制御対象としての回分式真空結晶缶は多変数制御対象であるから、その動特性を互いの伝達関数は各操作期ごとに伝達マトリクスで総括的に表示することができる。なお、表4-4.1に各操作期ごとの操作量と制御量をまとめた。

まず、濃縮期では操作量と制御量は1対しかないのでマトリクス表示する必要はない。したがって(4-1.12)式または(4-1.20)式がそのときの濃縮期の伝達関数である。

起晶期の伝達関数は、過飽和度については(4-2.34)式、缶内真空度については(4-1.18)式または(4-1.22)式を総合して得られる。しかし、缶内真空度の操作量については、すでに4-1.3項で述べた理由に

表4-4-1 各操作期における操作量および制御量

操作期	操 作 量				制 御 量		
	加熱蒸気速度 w_0	温水注入速度 w_c	母液注入速度 w_m	冷却水非蒸気流量 w_{ci}, u_a	過飽和度 Σ	カタサ α	缶内真空度 p_s
濃縮期	X	X	X	○	X	X	○
起晶期	○	○	X	○	○	X	○
育晶期	○	X	○	○	○	○	○
煎き締め期	X	X	X	○	X	X	○

(註) 1. ○印は要 X印は不要

2. 煎き締め期のカタサはシーケンズ制御量に属するのでここでは制御量に含めていない。

よりここでは筆者の推奨する吸入空気速度 \bar{u}_a を採用する。

$$\begin{pmatrix} \Delta Z \\ \Delta p_s \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{T_{wo}S} & \frac{-1}{T_{wc}S} & \frac{-\bar{P}_a K_{ps}/(F-\bar{u}_a)}{\left(1+\frac{V}{F-\bar{u}_a}S\right)(1+\tau S)} \\ 0 & 0 & \frac{\bar{P}_a/(F-\bar{u}_a)}{1+\frac{V_s}{F-\bar{u}_a}S} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Delta W_o \\ \Delta W_c \\ \Delta \bar{u}_a \end{pmatrix} \quad (4-4.1)$$

育晶期の伝達関数は、過飽和度については(4-3.44)式、カタサについては(4-3.53)式、缶内真空度については起晶期と同様に(4-1.20)式を総合して得られる。

$$\begin{pmatrix} \Delta Z \\ \Delta X \\ \Delta p_s \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{T_{wo}S} & \frac{-1}{T_{wm}S} & \frac{-\bar{P}_a K_{ps}/(F-\bar{u}_a)}{\left(1+\frac{V_s}{F-\bar{u}_a}S\right)(1+\tau S)} \\ \frac{K_1}{(1+\tau S)S} & \frac{-K_2}{(1+\tau S)S} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{\bar{P}_a/(F-\bar{u}_a)}{1+\frac{V_s}{F-\bar{u}_a}S} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Delta W_o \\ \Delta W_m \\ \Delta \bar{u}_a \end{pmatrix} \quad (4-4.2)$$

煎き締め期は濃縮期と同様に1対の操作量と制御量で表現できるからマトリクス表示する必要はないが、(4-1.18)式または(4-1.22)式がその煎き締め期の伝達関数である。

4-4.3 回分式真空結晶缶のブロック線図

本章で得た回分式真空結晶缶の動特性をまとめ、ブロック線図で表示する。動特性は各操作期間において異なっているが、それらを全部総合して表わすことができる。図4-4.1は、特性をできるだけ詳細に分割して示したものである。ブロックの中に記入した伝達関数はそれを導いたままの形で表現した。また、育晶期から育晶期への切換え記号、および缶内真空度の操作量として冷却水を使うか吸入空気を用いるかの選択の切換え記号をそれぞれ丸印のスイッチ記号で表わした。つぎに、図4-4.2は、図4-4.1のブロック線図を等価変換によってまとめたものである。このブロック線図に記入した伝達関数およびそのパラメータは各制御量の左端に添書した式からそのままの形で記載した。また切換え記号は前図と同じ意味をもっている。

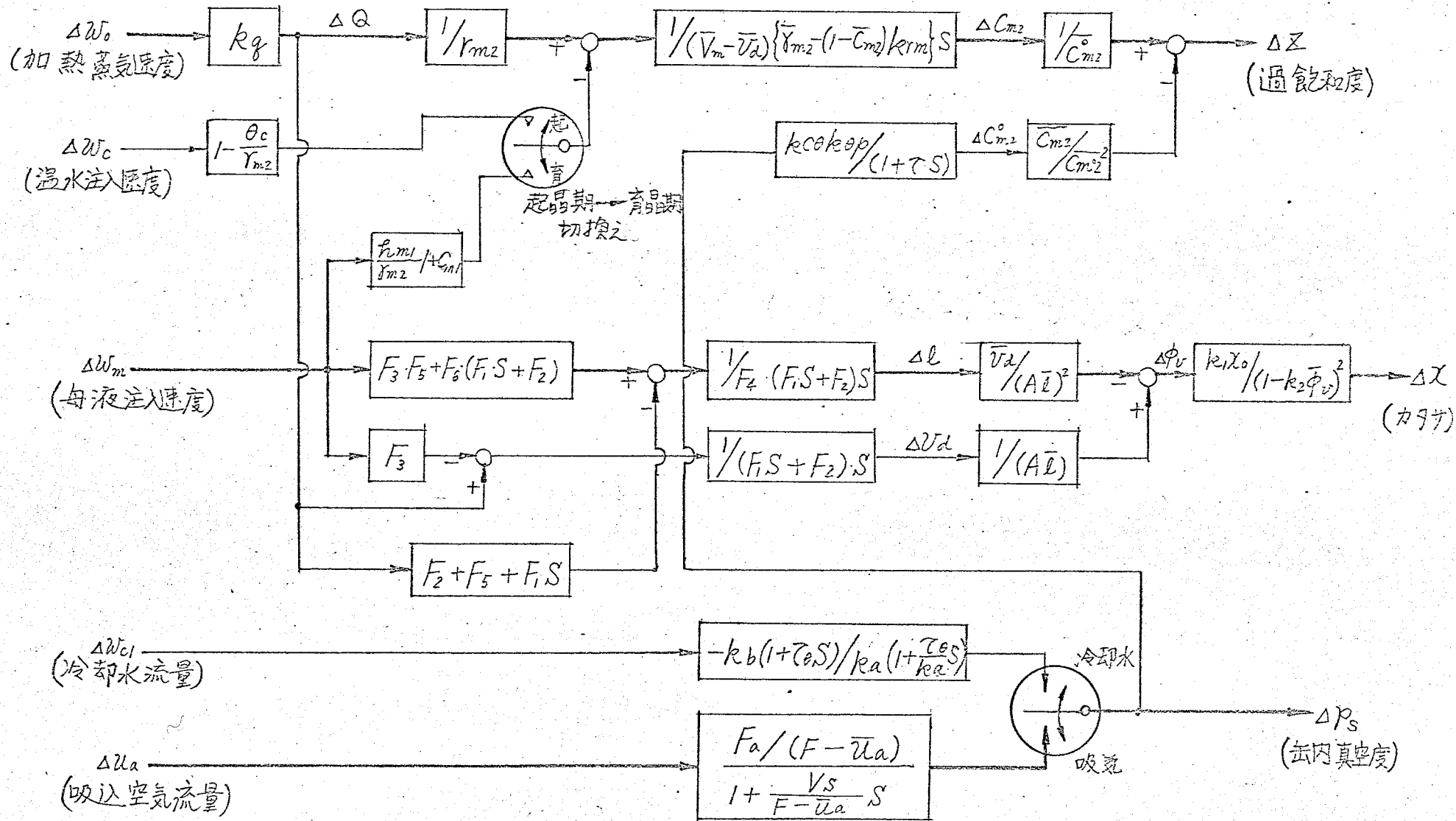


図 4-4-1 回分式真空結晶釜のブロック線図 (1)

東京工業大学
267067

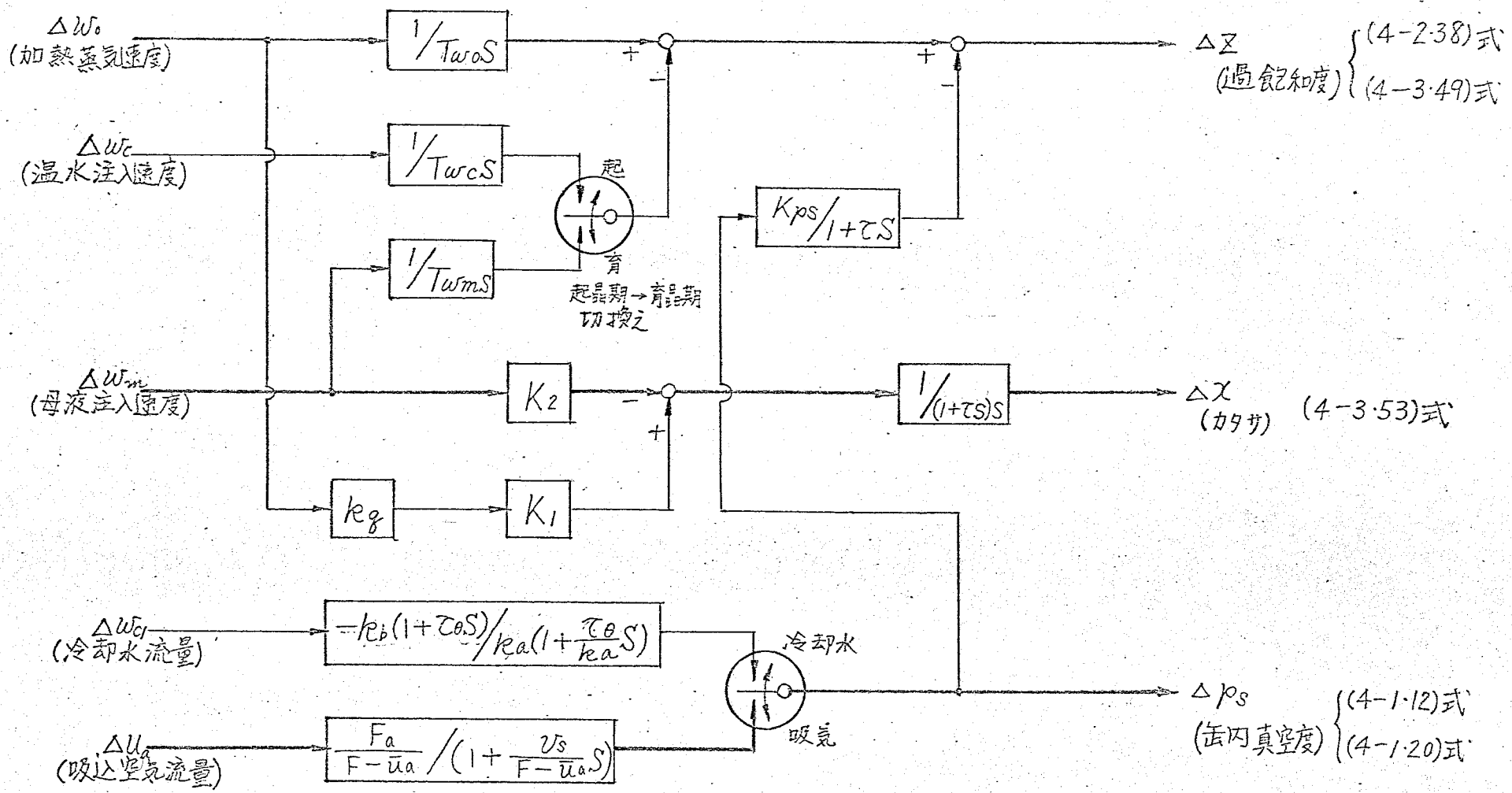


図4-4.2. 回分式真空結晶釜のブロック線図(2)

要約

本章の特性解析で得られた回分式真空結晶缶の定常特性および動特性のうち制御系設計に直接用いられる特性式を4-4節にまとめ、詳細なブロック線図(図4-4.1, 図4-4.2)の形にまとめて集約した。そこで以下に各節ごとに得た特性の要点をまとめる。

4-1節では濃縮期における特性を論じたが、それ以降の起晶期および育晶期に共通する結晶缶特性の準備的の内容をも含めた。すなわち、ここでは缶内真空度を制御する操作要素としての混合凝縮器の特性を解析し、その動特性式(4-1.18)式を得た。しかし、この操作要素の機能には混合凝縮係数の与えられない不確定さによって信頼性に欠ける所があることを論じた。そこで、これに代って缶外からの外気吸込み要素を取りおけて、そのときの動特性式(4-1.22)式を求め、これが混合凝縮器の特性よりも信頼性の点ですぐれていることを論じた。つぎに母液の温度特性を求めめるため、まず一般的に沸騰プロセスについて考察した。沸騰プロセスの温度特性すなわち液の沸点を気相側圧力で制御する機構を解析するため、筆者は沸騰係数 k_b を導入してその動特性式(4-1.29)式を得ることができた。最後に、濃縮過程にある過飽和度の時間的の上昇特性(4-1.40)式を計算して濃縮時間の算定に資することができた。

4-2節では起晶期における特性解析を述べた。ただし起晶のための種入れ動作については制御に直接関係がないので触れなかった。定常特性として得た関係式は操作量向の関係式(4-2.22)式と加熱速度と蒸気速度との関係式(4-2.29)式である。後者の式は主としてカランドリア形式の結晶缶に限定して導いたが、筆者の実験によって実用性の高い点に特徴がある。つぎに、結晶の定常成長速度がいわゆる ΔL 法則に合致していることを(4-2.17)式で証明し、これを変形した(4-2.19)式を用いることにより育晶時間については操業時間の算定ができることを示した。また、起晶期の液位変動率を(4-2.24)式で与えた。カタサの時間的変化を(4-2.31)式で示したが、これに関連してカタサの制御工学的な意味を考察し、筆者の見解としてこれが間接的に結晶容積分率をあらわしていること、およびカタサ自体の測定法に密接な関係をもつ制御量であることなどを詳論した。動特性は起晶期の唯一の制御量である過飽和度だけについて解析した。その結果、(4-2.34)式に示し

に通り、過飽和度の動特性は加熱速度と母液注入速度に対しては積分性をもち、缶内真空度に対しては1次おくれ特性をもちことが明らかにした。

4-3節では育晶期と煎き締め期とをまとめて論じた。言うまでもなく育晶期は結晶缶のもっとも重要な時期であり、しかも結晶缶の特性をもちとも総合的にあらわしている期間である。そこで、まず育晶期の操業方法を制御工学的な観点から考察し、育晶期操業の特徴が煎き上げ操作にあり、カタサをその制御量の一つとして用いることの本質的な意義を実操業の面から論じ吟味した。その結果、現行の育晶方法が原理的に自動制御にかつた方法であることが分った。さて、定常関係式は、操作量間の関係式(4-3.16)式、(4-3.17)式の他に加熱速度と母液注入速度との関係式(4-3.21)式が得られた。カタサの特性を論じるために、まず一般的にカタサ変動の基礎式を考察し(4-3.26)式を得た。この式を元にしてカタサを一定に保持するための母液注入速度(4-3.29)式、煎き締めを行なったときのカタサ変動をあらわす(4-3.33)式、水煎きを行なったときの変動式(4-3.37)式を求め、いずれの場合においてもカタサが鋭敏に変動する制御量であることを明らかにした。動特性は過飽和度とカタサについて求めた。過飽和度の動特性は起晶期のそれと形式的に類似した伝達関数(4-3.44)式で表わされること、および過飽和度が加熱速度と母液注入速度に対しては積分性を有し、缶内真空度に対しては1次おくれ特性を示すことを明らかにした。カタサの動特性は(4-3.53)式に示したように、加熱速度と母液注入速度に対しておくれを伴った積分特性もしくは場合によっては近似的に2次積分特性をもちことが分った。

4-4節では以上で得られた定常特性および動特性を制御量と操作量とは定常特性と動特性とは大別してまとめた。この整理方法によってこの複雑な特性の経緯が明確になったばかりではなく、制御系設計の際に便利な形にまとめることができた。動特性の総括として、表4-4.1に各操作期との操作量と制御量をまとめ、図4-4.1に詳細なブロック線図を示し、さらにそれを等価変換してまとめ図4-4.2のブロック線図を得た。

本章の特性解析によって回分式真空結晶缶の制御に必要な特性をすべて把握することができた。

5. 実験

5-1 蔗糖用回分式真空結晶缶による実験

本節では蔗糖用カランドリア形真空結晶缶を用いた実験とその結果について述べる。実験内容を明確にするため、5-1.1項において装置規模と操業内容を略述し、結晶缶特有の二三の検出器について説明する。実験結果を定常特性と動特性に分けてそれぞれ5-1.2, 5-1.3項で述べる。最後に結果の吟味を行ない、理論値と実験値との差異をもたらす原因と特性式の適用限界などについて考察する。

5-1.1 装置の概要

(i) 実験に供した装置の構成と規模

実験に供した回分式真空結晶缶の構成概略図を図5-1.1に示し、その各構成要素の能力および寸度を表5-1.1に示す。

母液、すなわち精製され脱色されたリカー^(*)の供給槽は結晶缶本体とはほぼ同じ高さに置き、供給源として充分な容積がある。またリカーは常に定温65°Cに制御されている。リカーおよび温水の供給槽の概略を図5-1.2に示す。

(ii) 操業内容

実験に用いた結晶缶は、並列運転している計6缶のうちの1つで、もっぱらもっぱら純糖度の高くしかも脱色度のよい糖液を用いて煎糖する専用のものである。製品の品種は上白糖もしくはグラニュー糖に限られているが、本実験ではそのうちグラニュー糖の煎糖だけに限定した^(**)。また、使用した母液すなわちリカーの濃度 C_{m1} は $74^{\circ}Bx$ ^(***)、温度 θ_{m1} は 65°C に調製したものを使った。温水はリカーと同じパイプを通じて注入し、その温度 θ_c は供給槽内において常に52°Cに制御した。加熱蒸気は工場ボイラーから供給されているが、減圧弁と過熱度調節装置によってプロセス用飽和蒸気として調整されており、結晶工程への共通ヘッダーから各カランドリアへ分配されている。結晶缶用加熱

(*) *liquor*; 精製され脱色された純糖率の高い蜜。以下この種の用語については附録用語集を参照のこと。

(**) 砂糖には大きく分けてグラニュー糖と上白糖があるが、両者は分離工程で種別される。ゆえに本題の実験ではこの品種の差は本質的ではない。

(***) 固形分量濃度 *Brix* の意。

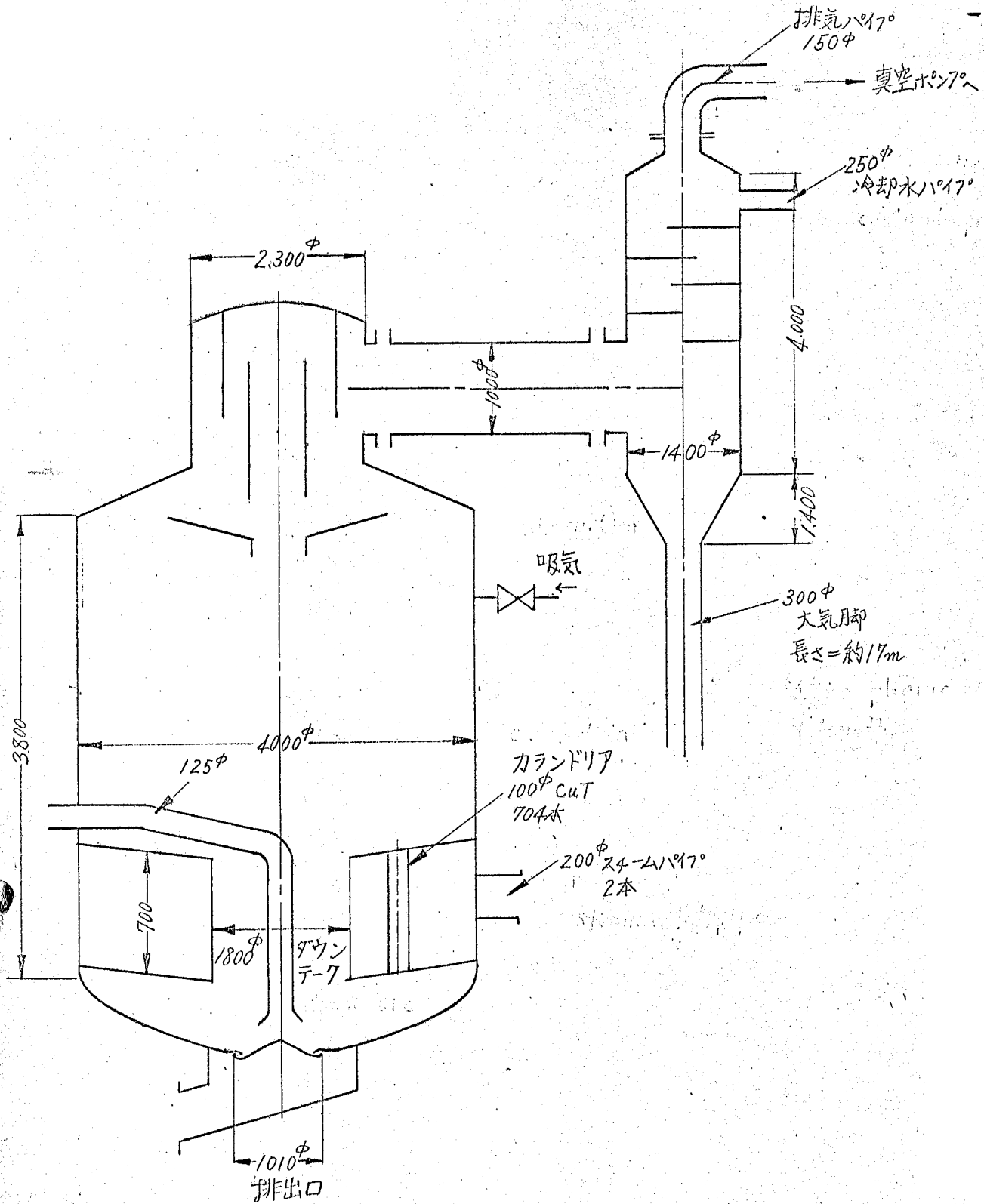


図 5-1-1 実験装置の概略図
 (数字の単位は mm とす)

表 5 - 1 . 1 実験装置の概要

構成概要	形式	公称能力	寸度 その他
真空結晶 缶本体	カランド リア形	50トン	伝熱面積：162 m ² ， 本体寸法：4000φ × 4700 H 本体まわりの保温材厚み：110mm
混合 凝縮器	雨滴形 多段棚式	90トン/時	棚数5段， 大気脚(300φ × 12 ^m)付き， 本体寸法：1400φ × 4000 H
真空 ポンプ	住複形、 横形	41.4 m ³ /分	75 HP, ただし 3缶共通の設備。
海水 ポンプ	多段 渦巻式	25 m ³ /分	225 kW, ただし 6缶共通の設備。

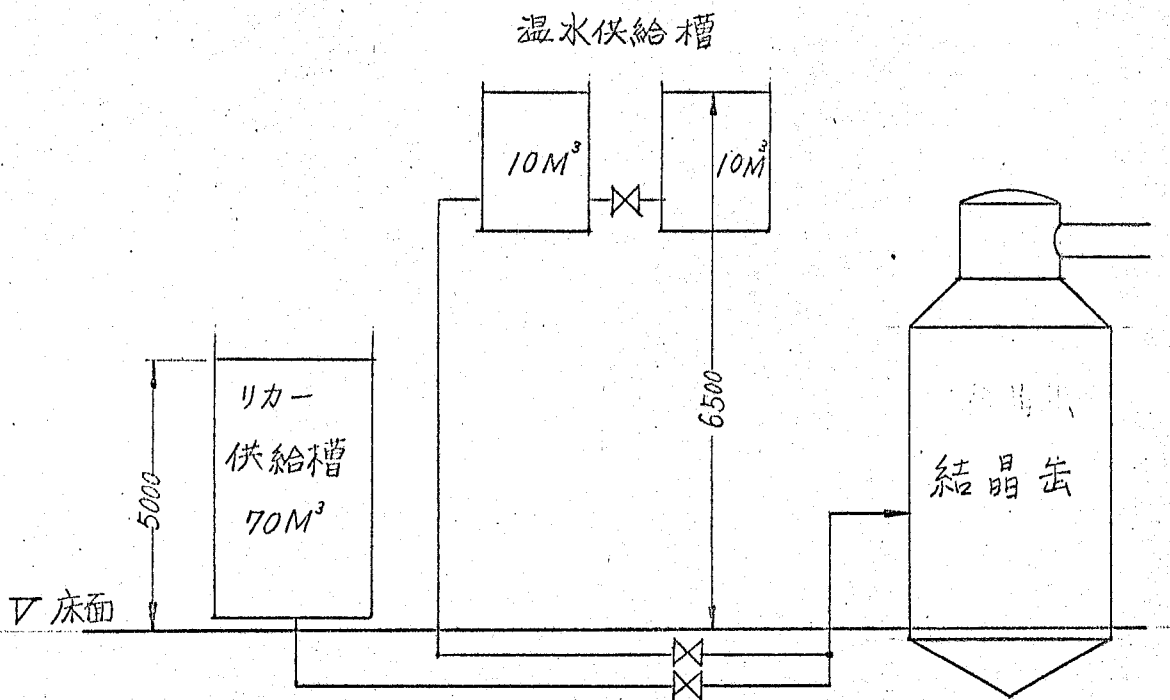


図 5-1.2 リカーおよび温水の供給槽配置概略

蒸気の供給系統は工場内の他の工程への系統や発電用蒸気タービンの排気系統などに関連があるから、その蒸気圧には多少の変動が見られた。混合凝縮器に海水を送り込む冷却用海水ポンプおよび真空ポンプは他の結晶缶と共通で使用しているから、他の結晶缶の急激な操業変動によって実験中の結晶缶の排気系統に多少の影響があることは免れなかった。このように、加熱蒸気速度と排気速度という2つの操作変量が、他の工程や並列運転中の他の結晶缶の操業状況によって多少の影響を受けることがあるが、実験の精度を確保するため、実験の計画、すなわち運転開始の時期や操作期の切換え時期などはあらかじめ細心の注意を拂って決めた。

つぎに、通常運転、すなわち実験中の結晶缶の平均的な操業状況を、図5-13に示した操作期順に沿って要説する。準備期は混合凝縮器と真空ポンプとの排気系統を始動させる時期で始まり、ほとんど同時にリカーの吸込みを開始する。リカーが缶内に注入され、リカーの液面がカランドリアの上部管板にかろうじて到達すると注液は中止する。このときのリカー仕込み量は約16ℓで、このくらいの量が伝熱効率最大の液量に相当すると言われている⁽¹⁾。リカーの吸込み終了と同時に加熱蒸気弁を開き、これから濃縮期に入る。缶内のリカーはほぼ沸騰し、濃縮され、やがて起晶点すなわち目起しに適した過飽和度に到る。目起し作業は、過飽和度がいわゆる擬安定域と不安定域との中間に位する中間域において行われ^(*)。このときの過飽和度は、筆者の実験では $\Sigma = 1.3$ に合った。目起しの方法は、缶体にとりつけた種入れ専用のパイプを通じて種とする粉糖(平均粒径22 μ 、総量0.9kg、全粒子数約 0.98×10^{10} 個)を吸込させる、いわゆる完全起晶法を採用した。しかし、この方法によると種入れと同時に多量の空気を吸込させることになるから、投入した種よりも多い結晶核が生成することが避けられなかった。起晶期が開始されると過飽和度を直ちに擬安定域に下げるため、温水注入を行なった。起晶期から育晶期への切換えはマスクットのカタサがある値にまで上昇した事を検出して行なった。このとき、マスクットの状態

(*) 過飽和領域は通常以下の3つの領域に分けることができる。

{	擬安定域: <i>metastable zone</i> ;	過飽和度 $\Sigma = 1.0 \sim 1.2$
	中間域: <i>intermediate zone</i> ;	" $\Sigma = 1.2 \sim 1.5$
	不安定域: <i>labile zone</i> ;	" $\Sigma = 1.5$ 以上

ただし、上記の過飽和度の値は蔗糖溶液についての値である。

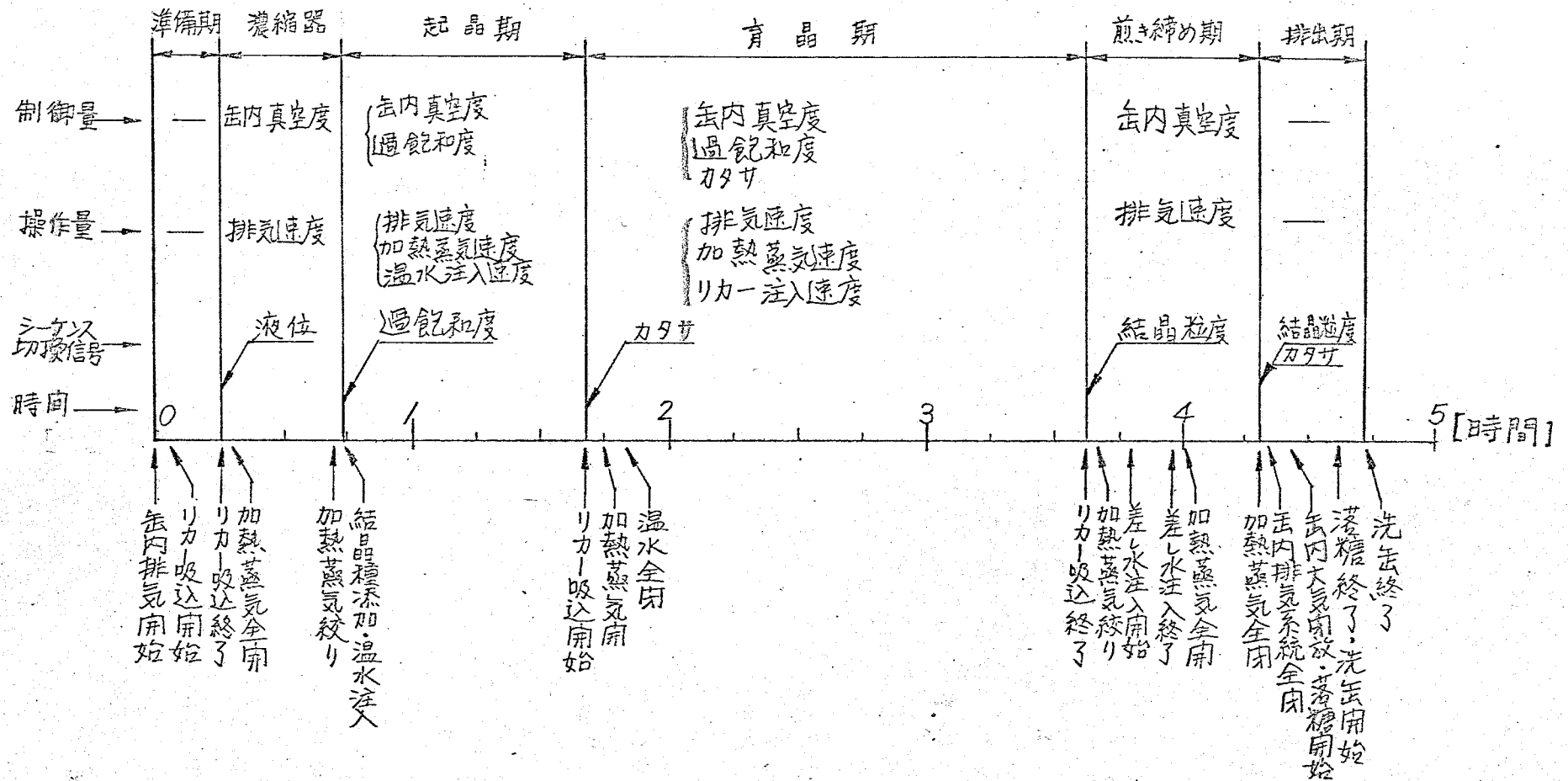


図 5-1-3 操業の内容と時間的推移(例)

を確認するため缶外へマスクットのサンプルを取出し、拡大鏡にて粒子の目揃いの具合や偽晶発生の有無を確認した。育晶期に入ると、リカーを注入し煎き上げ操作を行なう。温水の閉止はリカーの注入と前後して行なった。育晶期間中は一定時間ごとにサンプルを取り出し、偽晶の発生や双晶、塊晶などの生成が無いかを確認し、顕微鏡で写真撮映した。また、カタサはほぼ液位に比例して増大させたが、マスクットの循環を壊すほどに硬く煎き上げることができた。結晶の平均粒径が 450μ になると育晶を打ち切り、煎き締め操作に移る。水煎きを1回行えば偽晶を消失させることができた。最終の煎き締めカタサは落糖に支障のない限度まで硬くした。排出操作の開始時期はマスクット貯槽の空き具合で早くも早くもなり、結晶工程と遠心分離工程とのバランスが重要であることを示した。

さて実験は操業条件のよい時期を選び、合計8バッチ数の実験を行なった。このうち3バッチは定常特性の検証に、残りの5バッチは動特性のために行なった。動特性は混合凝縮器の冷却水流量、外気吸入速度、温水注入速度、リカー注入速度、加熱蒸気速度の各操作量のステップ入力に対する制御量およびその他の状態量の過渡応答を測定することによって得た。実験した装置はかなり大きく、22ヶ所にもおよぶ測定点は処々に隔っているため測定作業はすべて中央指令方式で行なった。ただし、制御量およびその他の重要な状態量は指示記録計によって測定した。

さて、動特性を測定する方法には、①ステップ応答法、②インパルス応答法、③周波数応答法、④相関関数法などがある。また最近の適応制御の研究に伴って、いわゆる動特性の固定あるいは認知と呼ばれている方法、とりわけ統計的な手法を用いた動特性の推定方法が開発されている。これらの方法はそれぞれの特徴を有しており、とくに統計的な推定を行なう方法は、測定対象の出力に雑音や外乱が含まれている場合や、入力信号の印加によって測定対象が乱されるおそれがある場合などに有効な方法である。しかし筆者が本実験を遂行するにあたって、ステップ応答法を採用した理由は以下の通りである。

- a. 制御対象が回分式であるため、比較的短い時間内で測定せねばならない。この点から考えて、周波数応答法などの定常値を用いる方法は長時間を要するので使用できない。
- b. 制御対象の出力に含まれる雑音や外乱の影響がそれほど肉題とはならないくらいに大きい入力信号を印加することができる。すなわち、いわゆるS/N比の大きい出力を得ることができる。
- c. 装置規模が大きく、同時に測定すべき出力の端子数が多い。(図5-1・4

参照)したがって測定装置の構成が莫大になり、本にそのようにして測定できたとしてもその結果を有効に活用できる理論的な手法に乏しい。

以上の理由により、比較的短時間で測定でき、測定手段は簡素で、応答曲線から直感的に特性が分かりやすいステップ応答法を採用した。後で述べるようにこの方法で求めた以下の実験結果から十分に筆者の求めた理論的特性を検証することができる。

(iii) 検出端の計装

操業中の結晶缶の状態を十分に把握するには図5-1.4に示す検出端を計装する必要がある。(図5-1.4の中でP'sのように()記号をつけた記号は別の場所での同一量の測定値をあらわしている。)これらの検出端の具体的な仕様を表5-1.2に示す。

(iv) 特殊な検出端

カタサ計および過飽和度計は通常のプロセス用検出端にくらべてやや特殊な原理と構造を有しており、しかも両者の検出値はいずれも制御量として重要であるから、その概略を説明する。なお、これらの検出器はとくに新しく試作したものである。

カタサ計の原理は、マスクット中での回転羽根が受ける流体力学的な抵抗力を、それを駆動する電動機が消費する電力に換算して測定する点にある。図5-1.5にその構成原理図を示す。回転部は結晶缶底部に取付け、ランドリア下部筐板の直下で羽根が回転するようには位置にある。パドルは捻れピッチを持たせた単純4枚羽根の構造^(*)で、その回転軸は外部からの給水によって軸封させた。駆動電動機の所要電流と電源電圧とがサーマルコンバーター回路に入り、ここでその電動機が消費するパワーを電流信号に変換している。電流-電圧信号変換器には図5-1.6の折線関数変換回路を内蔵させた。この折線関数は、すでに4-3, 4-4節で述べたように、カタサの大きな変動範囲をレンジ切換えなしで包含させるために設けたものである。記録計の目盛りは100分目盛である。

本実験に用いた過飽和度計は非点上昇法に立脚しており、いわゆるHolve式⁽³⁾

(*) 経験的に、ねじれピッチをもつた羽根の方が良好な指示を示す、と
言われている。⁽²⁾

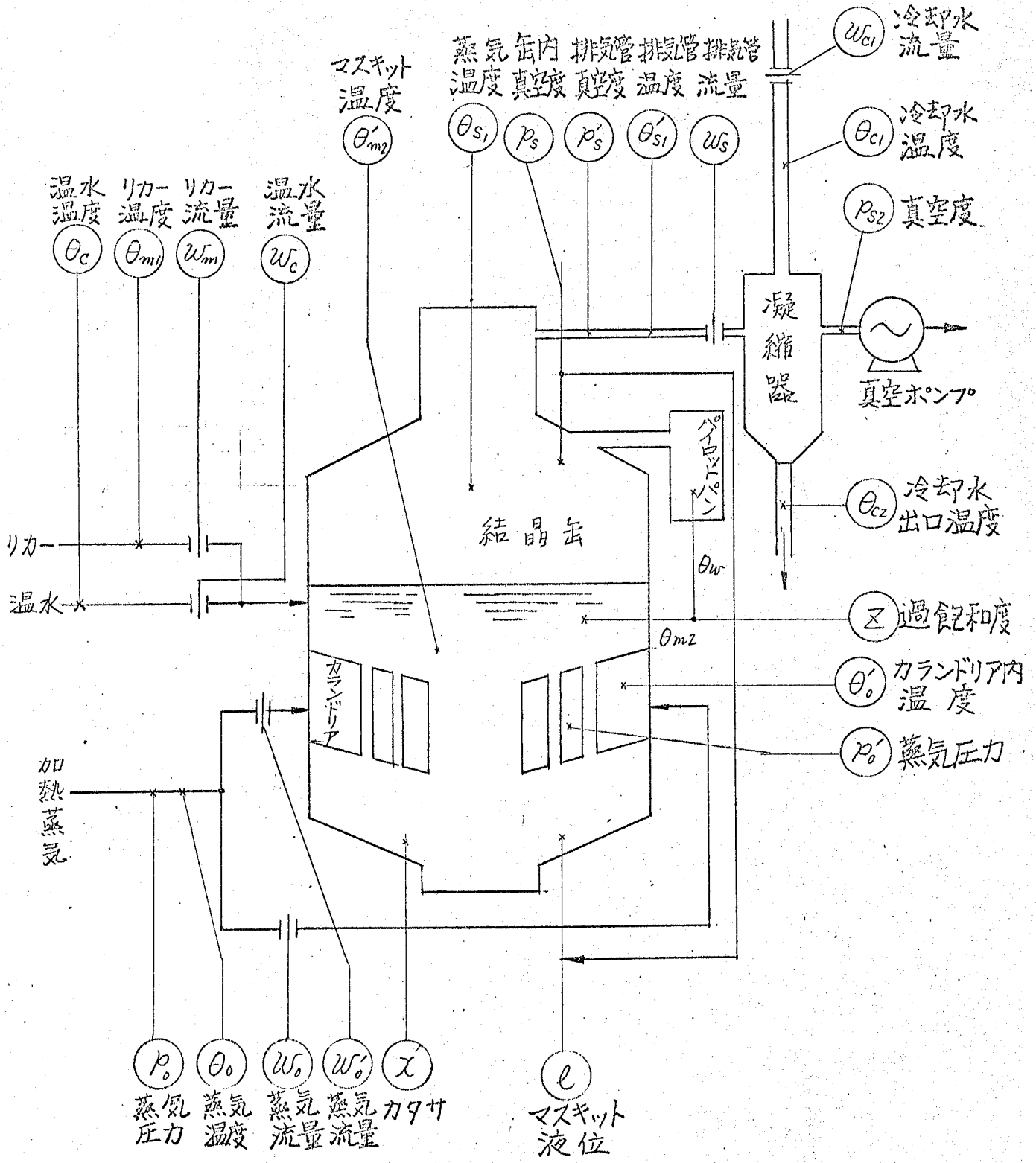


図 5-1.4 検出端の計装図

表5-1.2 検出端の様

記号	検出端	指示, 記録計	備考
リカー流量 W_m	電磁流量計 (横河製) 発信器MFP-04 増幅器HMF-13	電子管式指示記録 横河製記録計 ER2P-12K1/10K2	
温水流量 W_c	{ OVAL流量計 (オーバル機器工業) および オリフス流量計	指示つき U字管マノメータ	管径3"φ, 500 l/min 管径3"φ オリフス口径28φ
蒸気流量 W_0, W_0'	オリフス流量計	U字管マノメータ	管径8"φ 圧力0.5kg/cm ² 温度140℃ オリフス口径100φ
冷却水流量 W_{c1}	オリフス流量計	U字管マノメータ	管径8"φ 300m ³ /hr, 海水 オリフス口径156φ
排気流量 W_s	ピトー管流速計	U字管マノメータ	ピトー管 動圧管20φ(76%) 静圧管10φ(76%)
カラゴリア内 温度 θ_0'	抵抗測温体	指示計 横河製 Y501	目盛範囲 0~200℃
冷却水出口 温度 θ_{c2}	水銀膨脹式 L型温度計	ブルドン管 ダイヤル指示	管口径8"φ 目盛範囲0~50℃ キャピラリー長さ3m
冷却水入口 温度 θ_{c1}	水銀膨脹式 L型温度計	ブルドン管 ダイヤル指示	目盛範囲0~50℃
マスク温度 θ_{m2}	抵抗測温体 Ni 100Ω (at 0℃) RB-E	電子管式指示記録 横河製記録計 ER2P-12K1/10K2	過飽和度計の 端子より
マスク温度 θ_{m1}	水銀膨脹式 L型温度計	ブルドン管 ダイヤル指示	目盛範囲0~100℃
缶内気相温度 θ_{s1}	抵抗測温体	指示計 横河製 Y501	目盛範囲0~150℃
蒸気温度 θ_0	水銀膨脹式	ブルドン管 ダイヤル指示	管口径8"φ 目盛範囲0~200℃ キャピラリー長さ3m

表 5-1.2 (フフキ)

記号	検出端	指示, 記録計	備考
リカー供給温度 θ_{m1}	水銀膨脹式	ブルドン管, ダイヤル指示	目盛範囲 $0 \sim 100^{\circ}\text{C}$
温水供給温度 θ_c	水銀膨脹式	ブルドン管, ダイヤル指示	目盛範囲 $0 \sim 100^{\circ}\text{C}$
排気管内温度 θ_{s1}	水銀膨脹式	ブルドン管 ダイヤル指示	管口径 $1\text{m}\phi$ 目盛範囲 $0 \sim 100^{\circ}\text{C}$ キャピラリ長さ 3m
蒸気圧力 p_0	水銀膨脹式	電子管式指示記録	$0 \sim 1.5 \text{Kg}/\text{cm}^2$
カランドリア内圧力 p'_0	水銀膨脹式	ダイヤル指示	$760 \text{mm Hg} \sim 0$ $\sim 1 \text{Kg}/\text{cm}^2$
真空ポンプ 吸入圧 p_{s2}	静圧検出	U字管モニター	760mm Hg
缶内真空度 p_s	圧力変換発信器 (横河製) PSP-81 $0 \sim 200 \text{mmHg abs}$	電子管式指示記録 (横河製) EREC 5-10K	
排気管内 圧力 p'_s	静圧検出	U字管モニター	760mm Hg
液位 l	静圧検出 浮球 D.Pセル	U字管モニター U字管モニター	液比重 1.4 液位 4m 計
カタサ x	フロペラ回転式 (日本電子産業製) 入力 $4 \sim 14 \text{mV A.C}$	電子管式指示記録 (横河製) ERIC 5- 99K1DZ-123	非線形関数スライド
週飽和度 z	抵抗測温体 θ_{m2}, θ_w とも RB-E, $Ni 100\Omega$ (at 0°C)	割算記録計 比率計 ER 1-90	パイロット・パン ヒータ 3kW

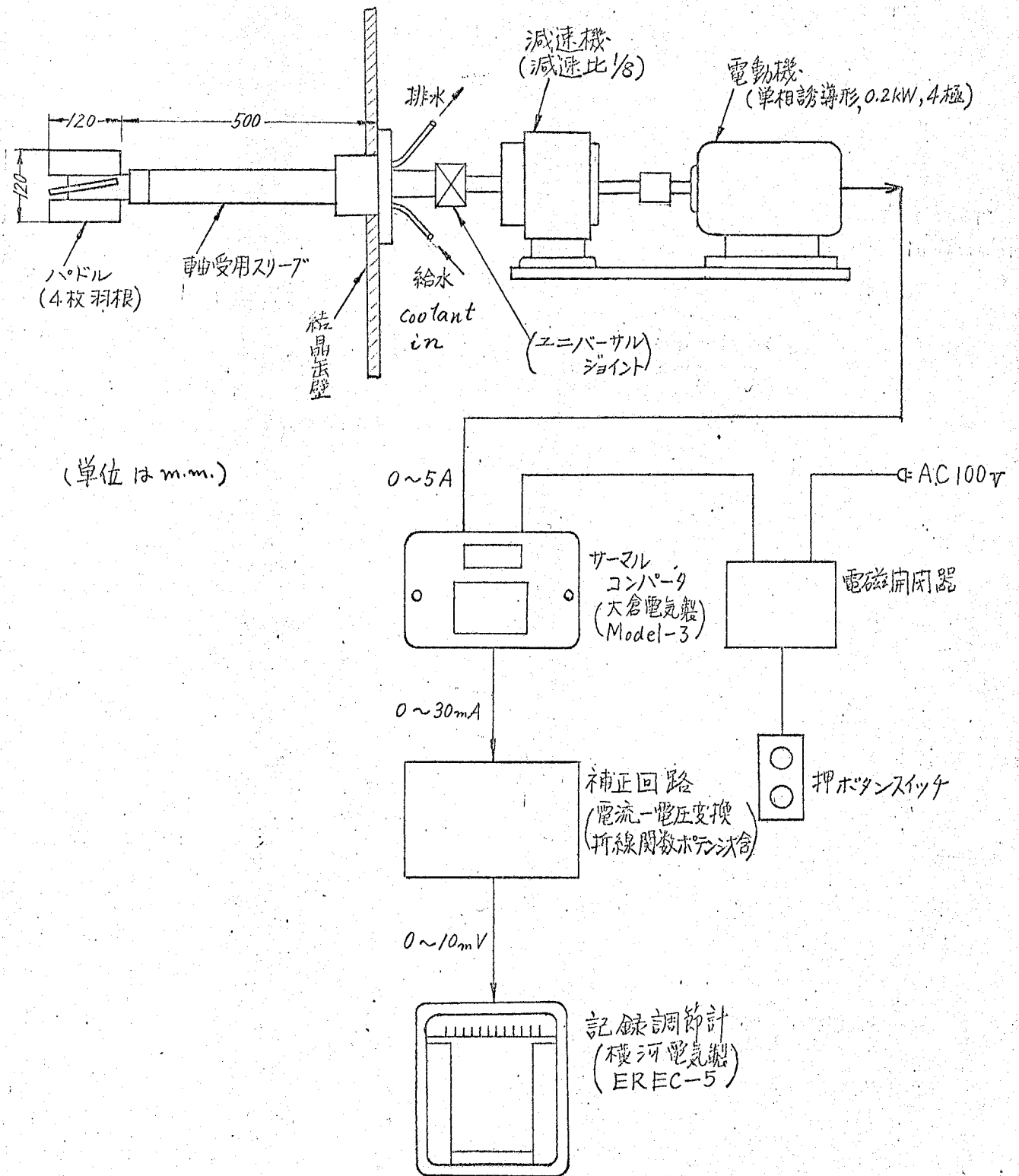


図5-1-5 カタサ計の構成

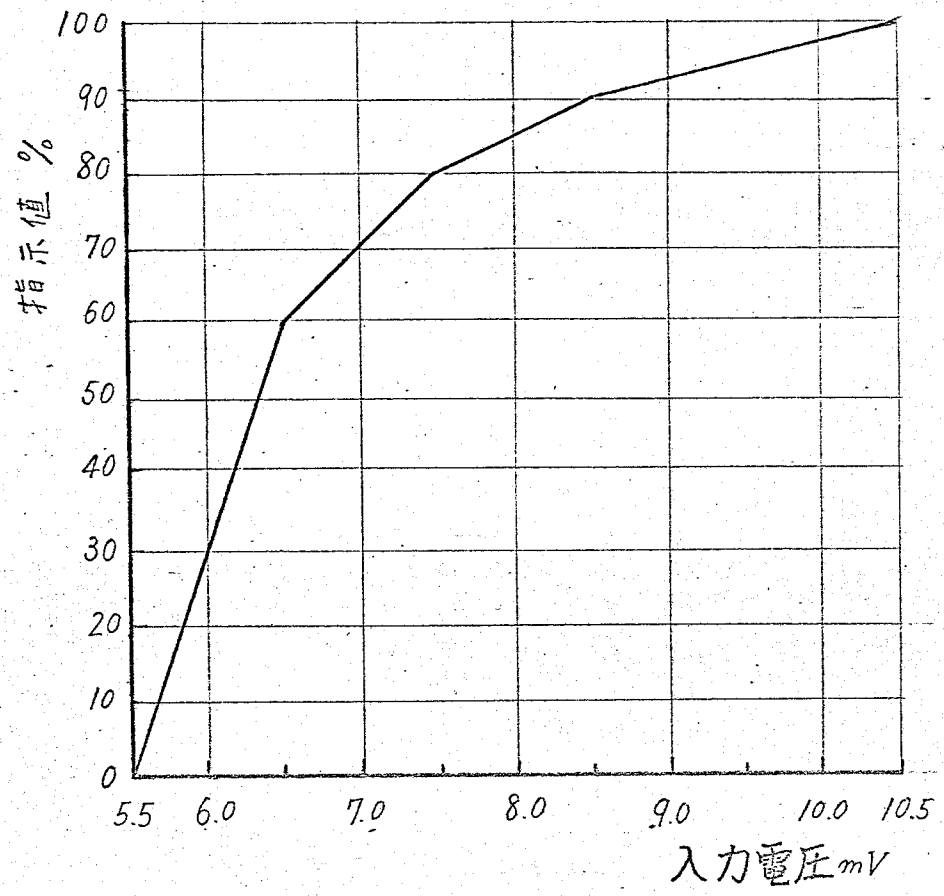


図 5-1-6 カタサ計の補正線図

と呼ばれるものである。この方法は蔗糖用過飽和度計のほかでもっとも秀れた実用性の高いものであると言われている。原理はDühring線図^(*)にもとづいており、図5-1.7にその構成原理を示した。蔗糖溶液についてのDühring線図を図5-1.8に示した。図5-1.8に見られる通り、過飽和度の値は(蔗糖溶液沸騰温度)÷(水沸騰温度)を測定すれば一意的に求めることができる。そこで図5-1.7に示した構成を採用した。同図において、パイロットパンは結晶缶内部と同じ真空度にあるから、その中の水の沸点 θ_w とマスクットの温度 θ_{m2} との比を過飽和度指示記録計で示し、過飽和度に応じた数値で読みとることができるようにした。ブリッジ回路部には安定化電源回路、ダブルブリッジ回路、純糖率補正回路を含めた。演算器は一種のV-A変換器で、計算を行っている。

5-1.2 定常特性実験

実験した結晶缶だけでなく工場全体の運転状況をも考慮して実験を行った。特性を精確に検証するためには、操業の条件と方法をあらかじめ規定しておき、また温水、母液、加熱蒸気、冷却水などの外的条件に左右され易い因子を別に制御しておいてできるだけ一定に保たねばならない。このため、筆者は本実験に先立って工場全体の運転状況を十分に調査し、結晶缶操業の規定を行ない、また上述の諸因子の定値性を確保して、実験データの信頼性と再現性を高めた。このような処置は実プラントによる実験、とくにその定常特性実験の際にとくに重要である。

次図5-1.9に示す一連の実験データは定常特性実験を行った3バッチのうちの1つで、これは筆者が定めた結晶法操業の標準規定にもっともよく合致し、しかも他の工程からの外乱がほとんどなかった実験データである。図5-1.9の①で示した操作シーケンスは図5-1.3に相当するもので、これで示した操作と時間の推移は②以下の時間尺度を与えている。③のカタサを図5-1.6の補正線図で補正した値を③'で示した。また同じく③'の結晶含有量分析値は結晶容積分率 ϕ_w である。この分析値は、10分間隔でサンプリングしたマスクット試料10グラム

(*) 溶液の沸点と純溶媒の沸点とを種々の飽和温度について点綴すると両者は直線関係にある。これがDühring線図の原理である。蔗糖溶液については、溶液の各濃度に対するこの直線は図上の1点で交叉することが分っている。(いわゆるDühringの法則とは異なる点に注意)

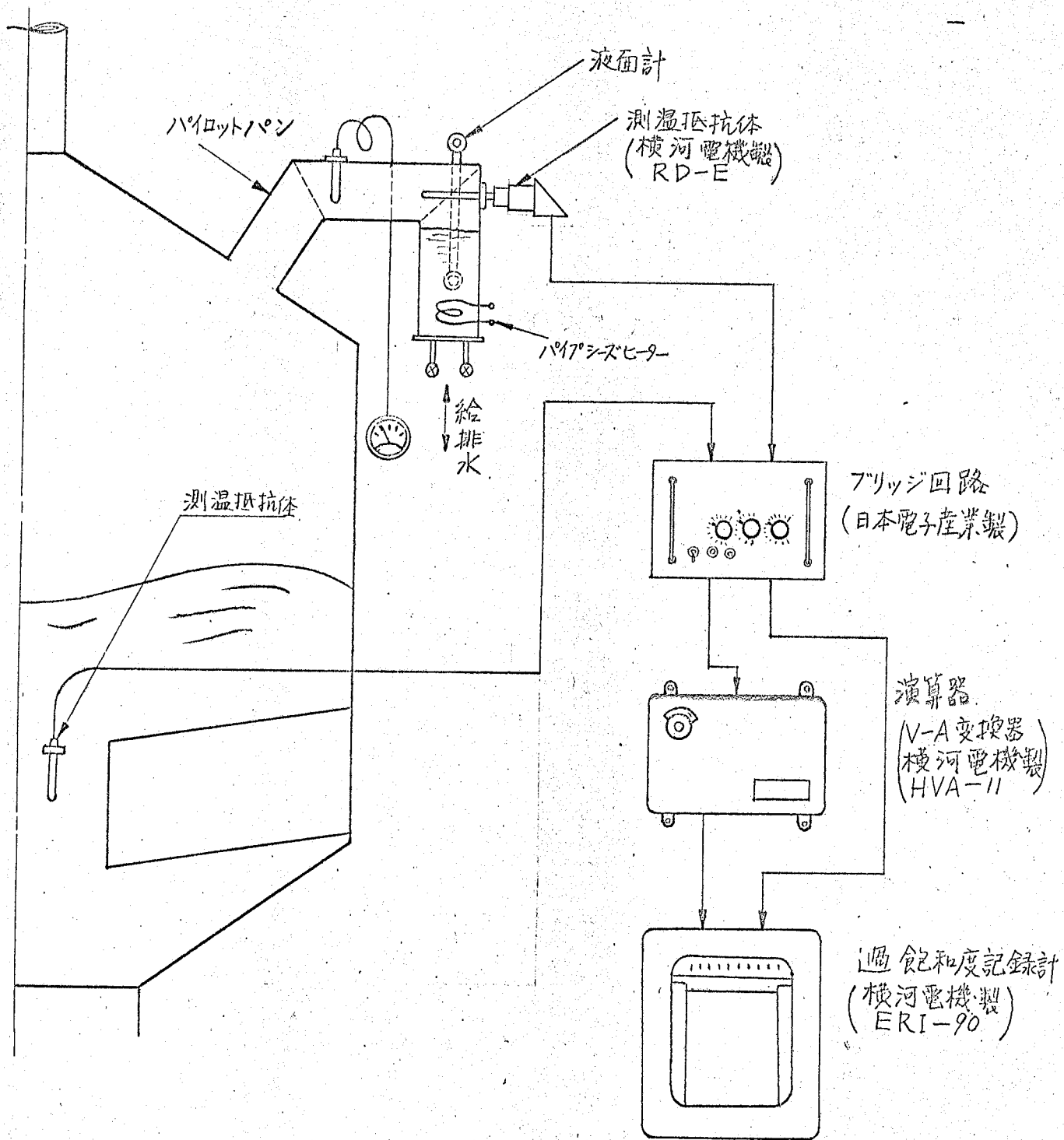


図 5-1.7 過飽和度計の構成

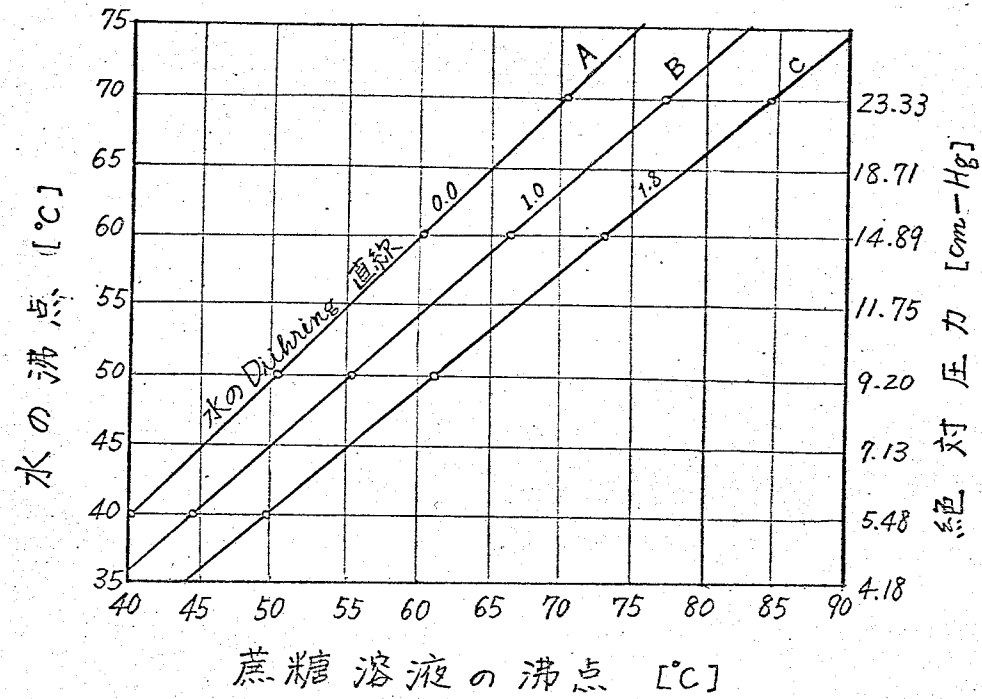


図 5-1-8 蔗糖溶液の Dühring 線図

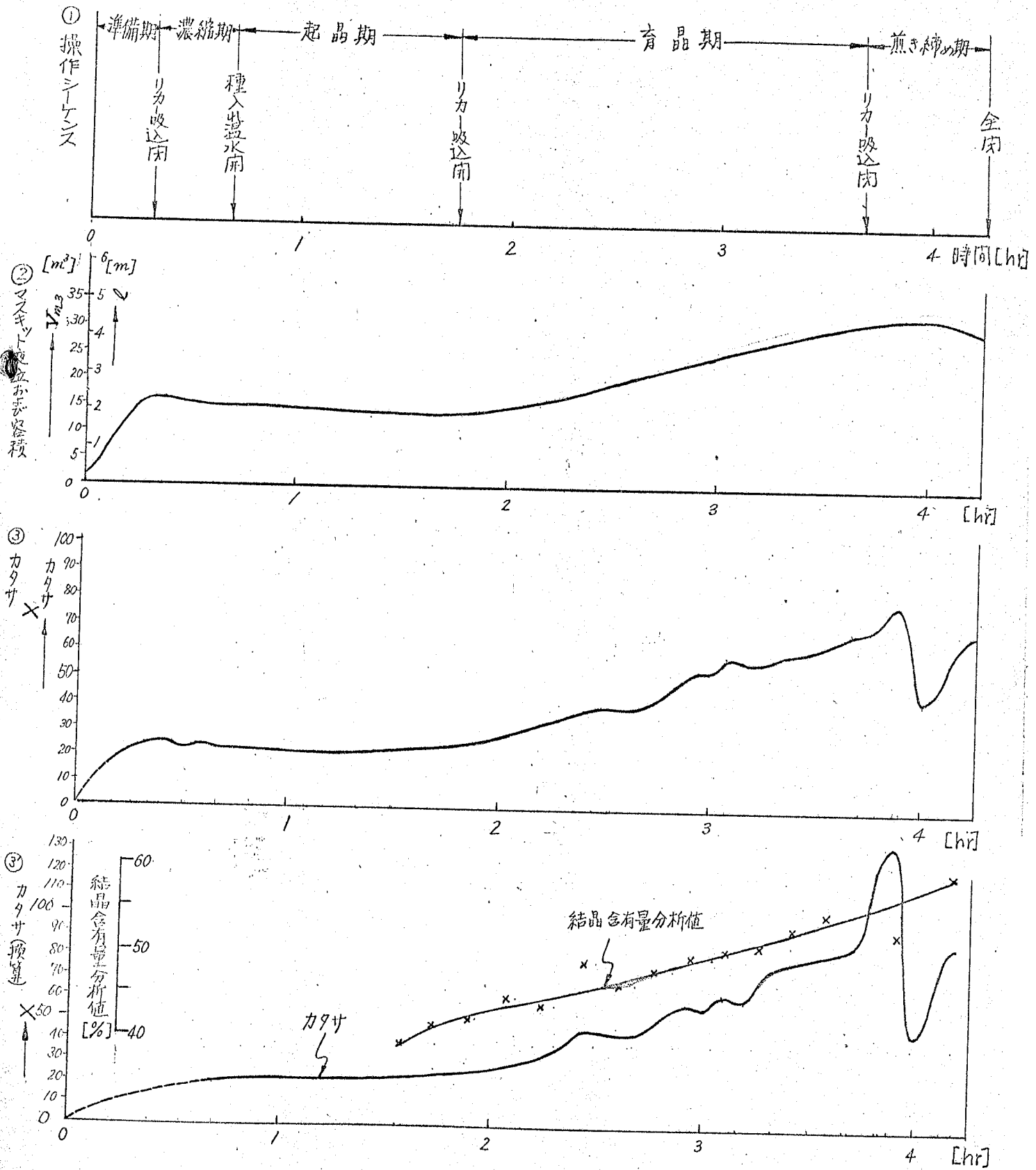
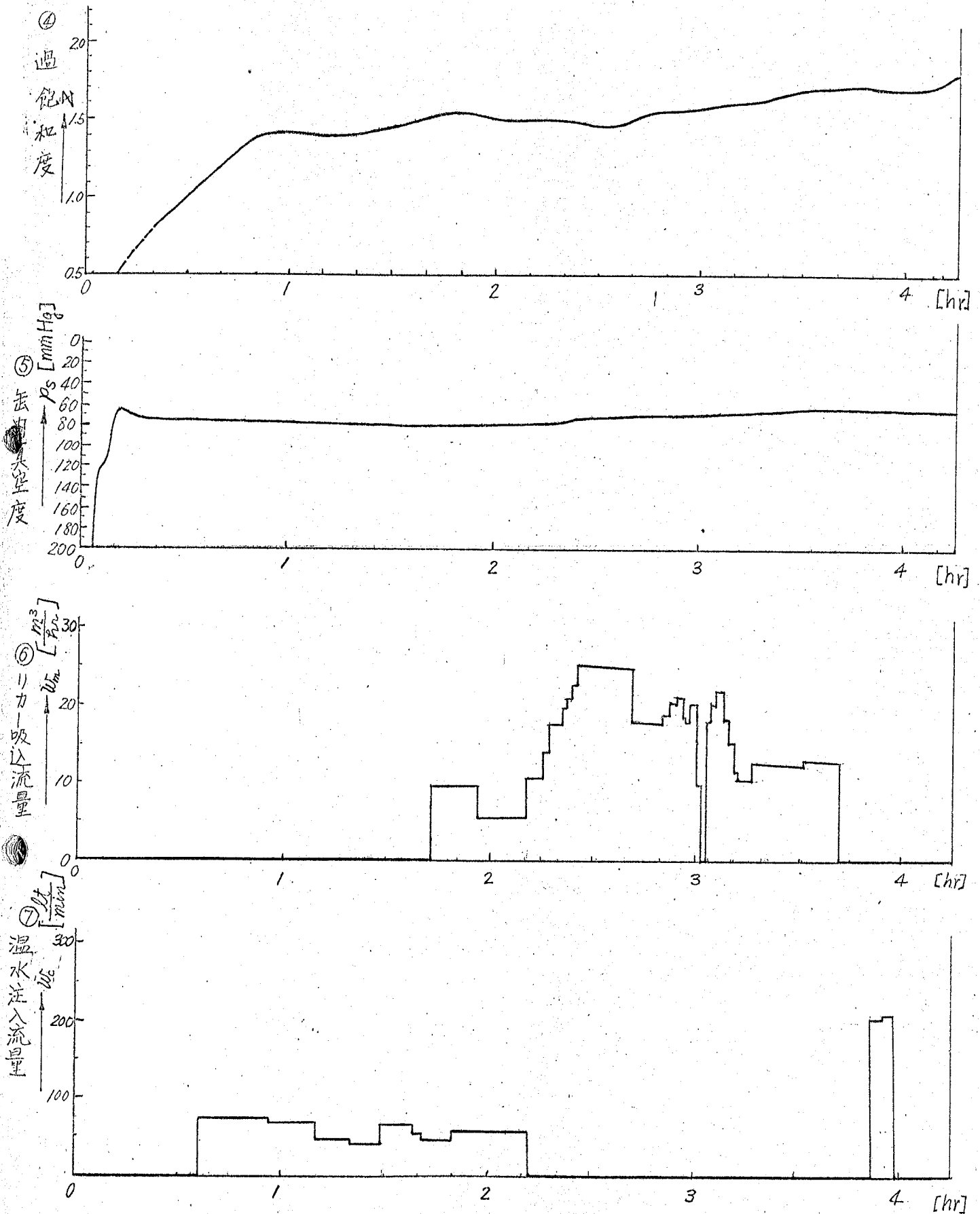
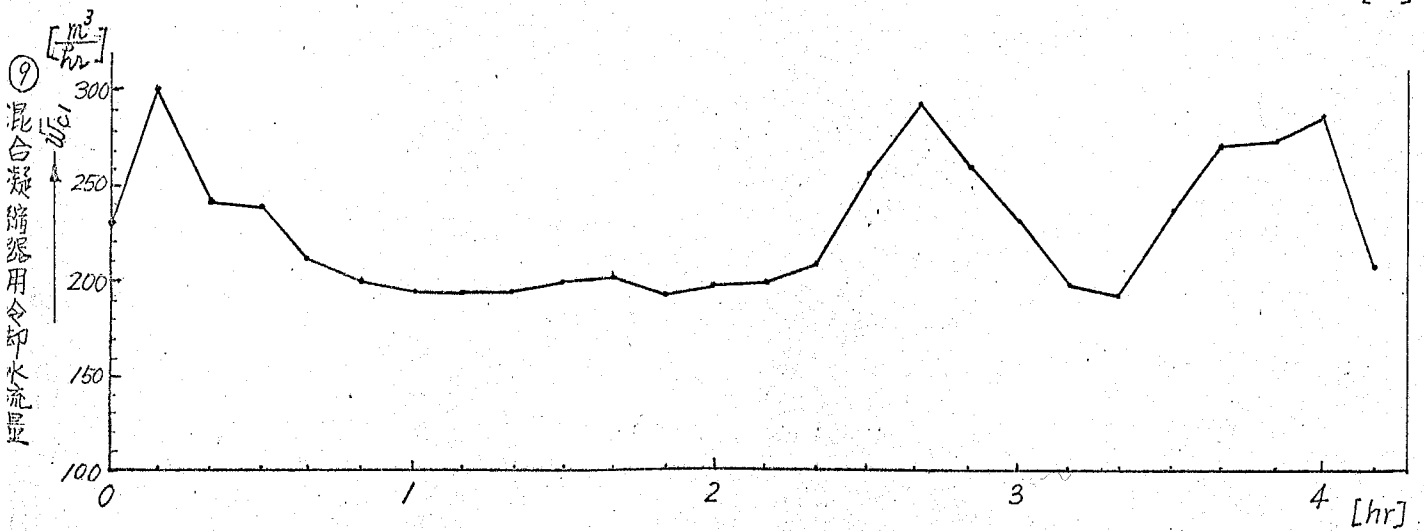
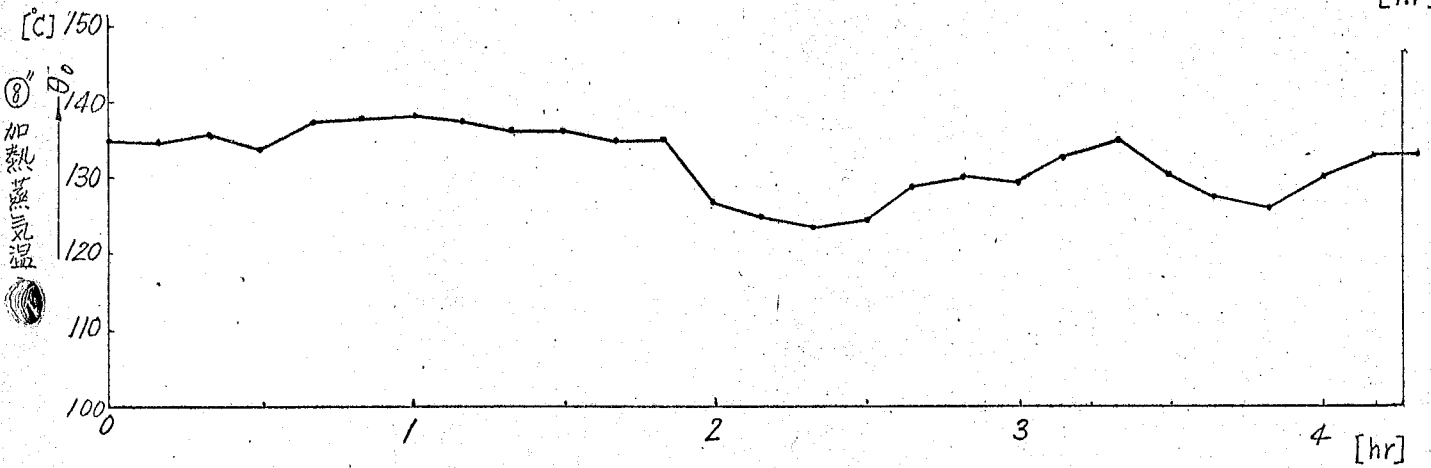
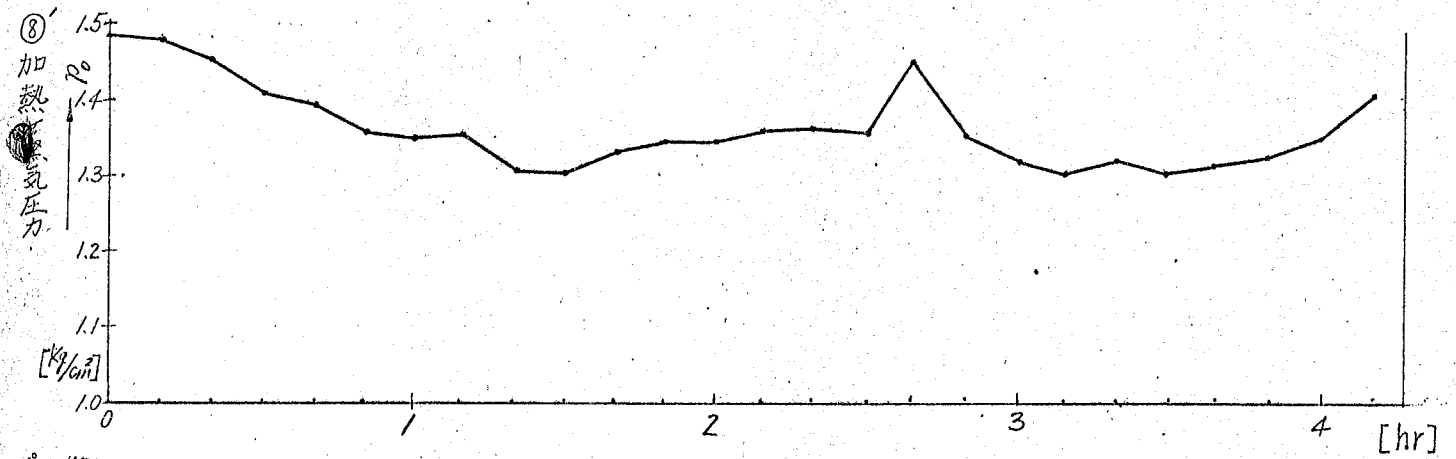
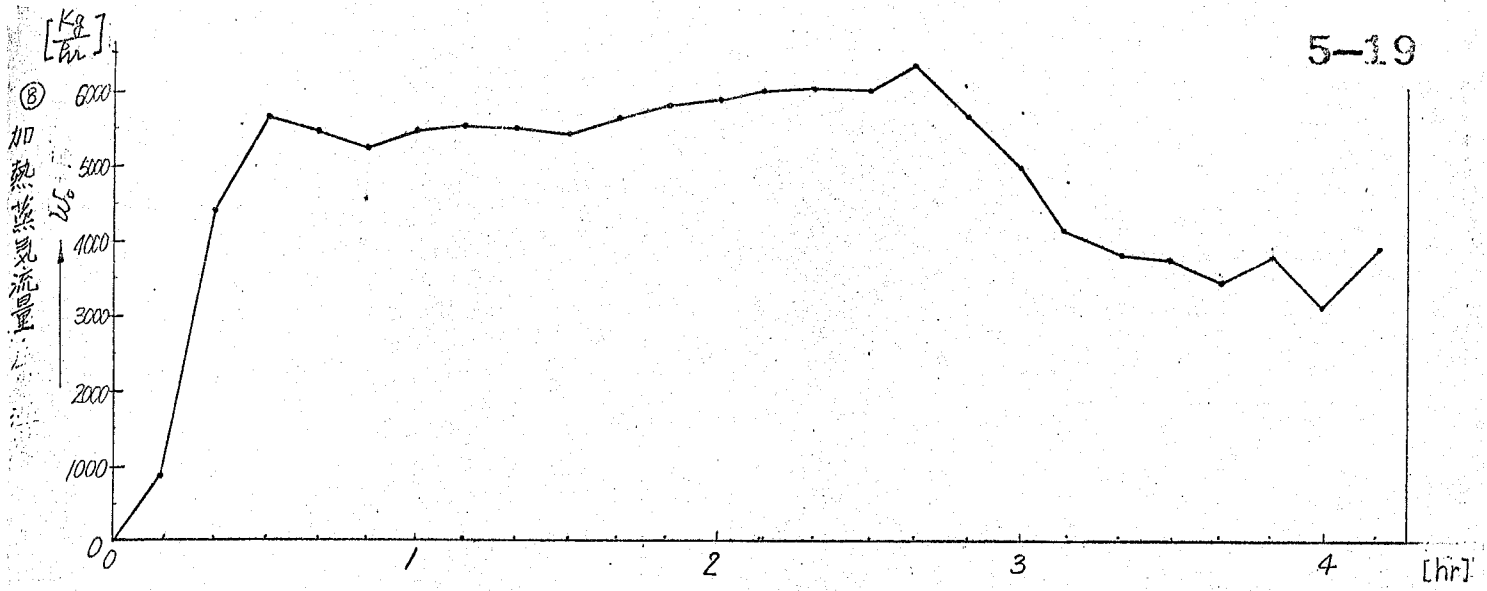
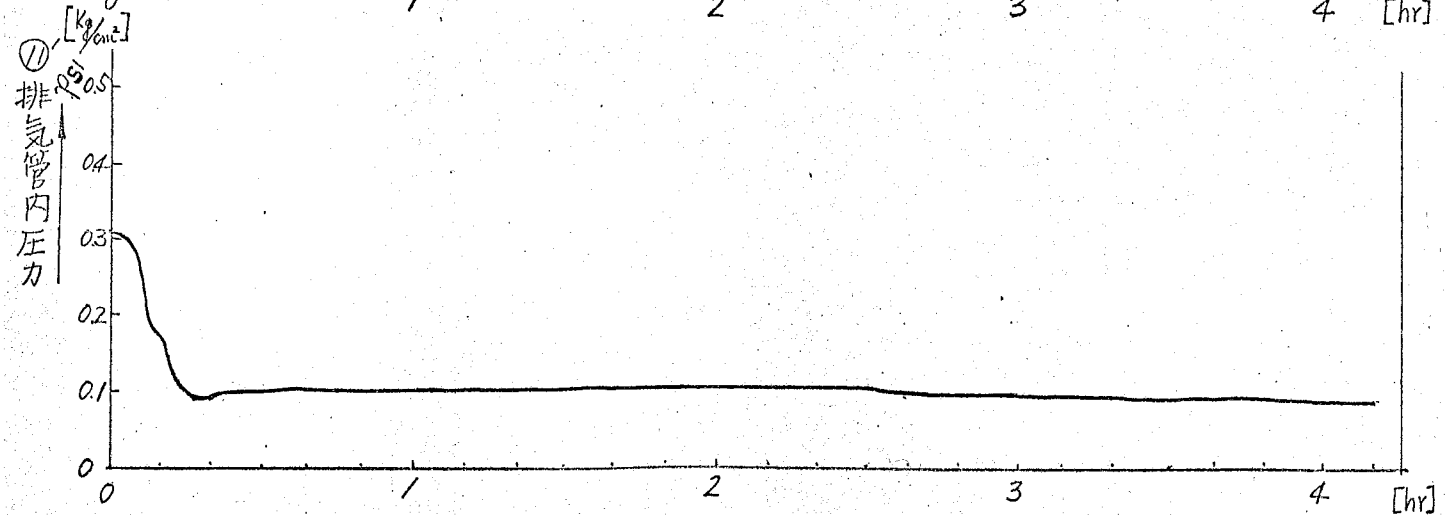
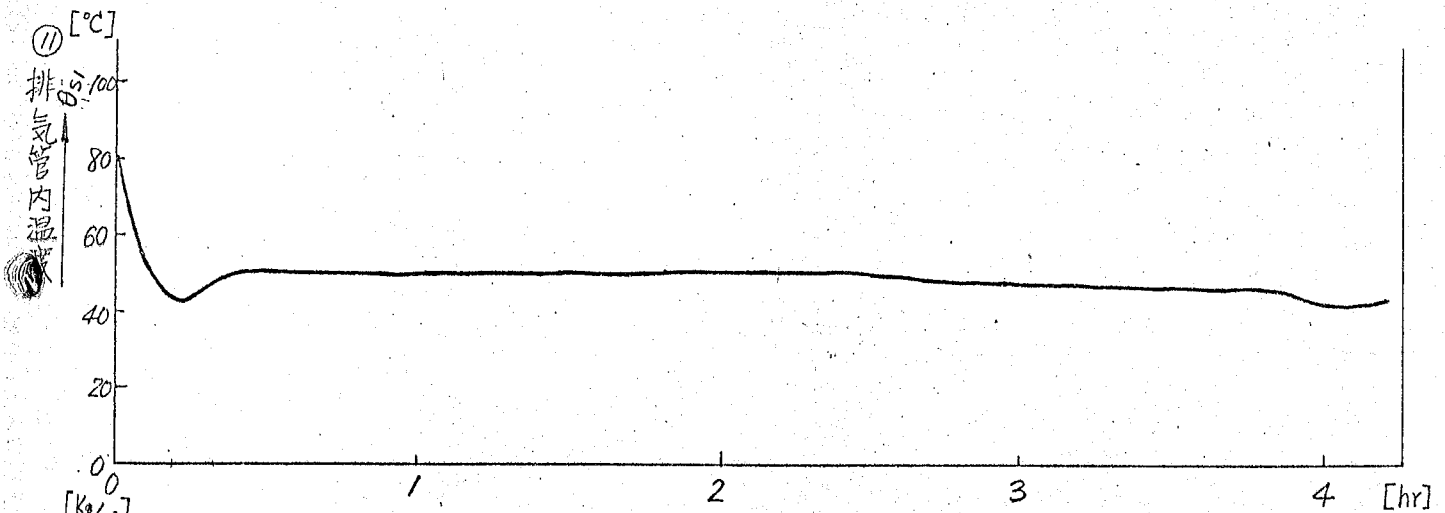
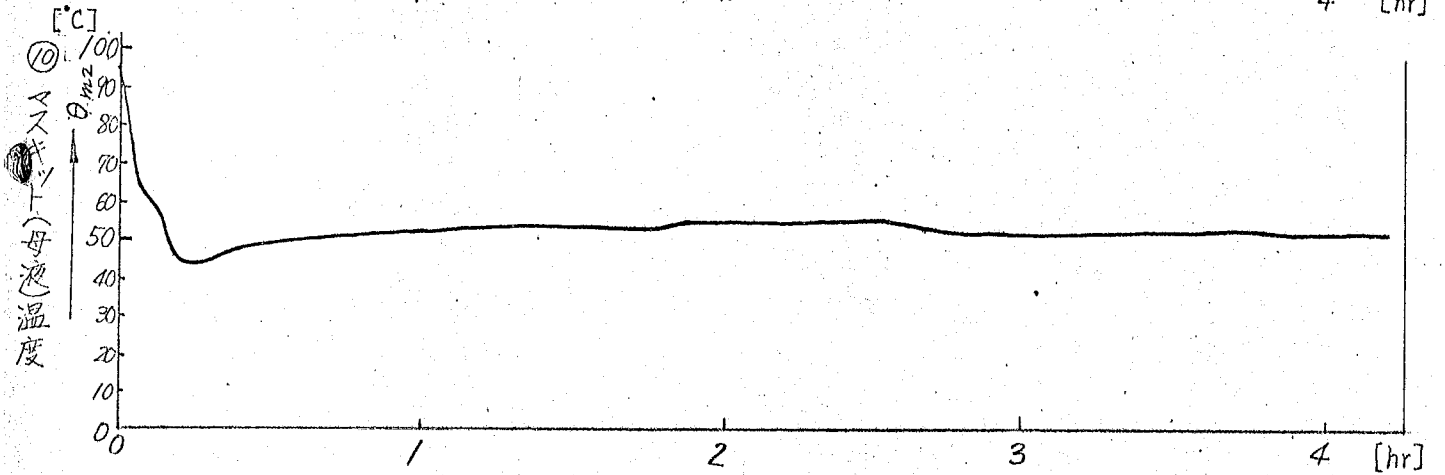
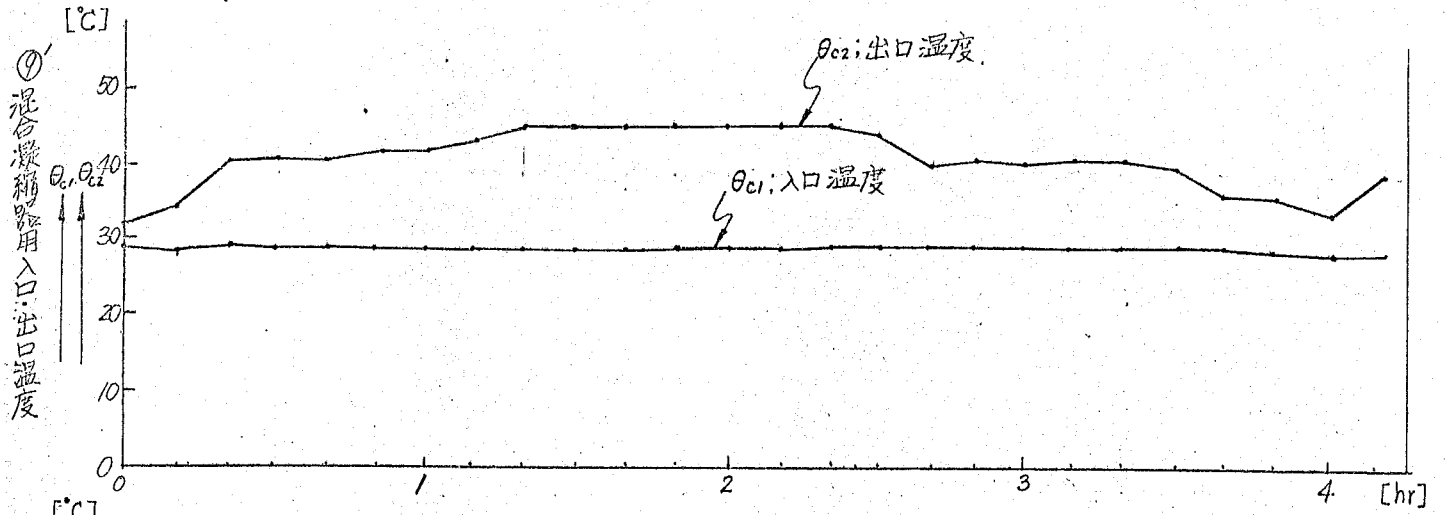
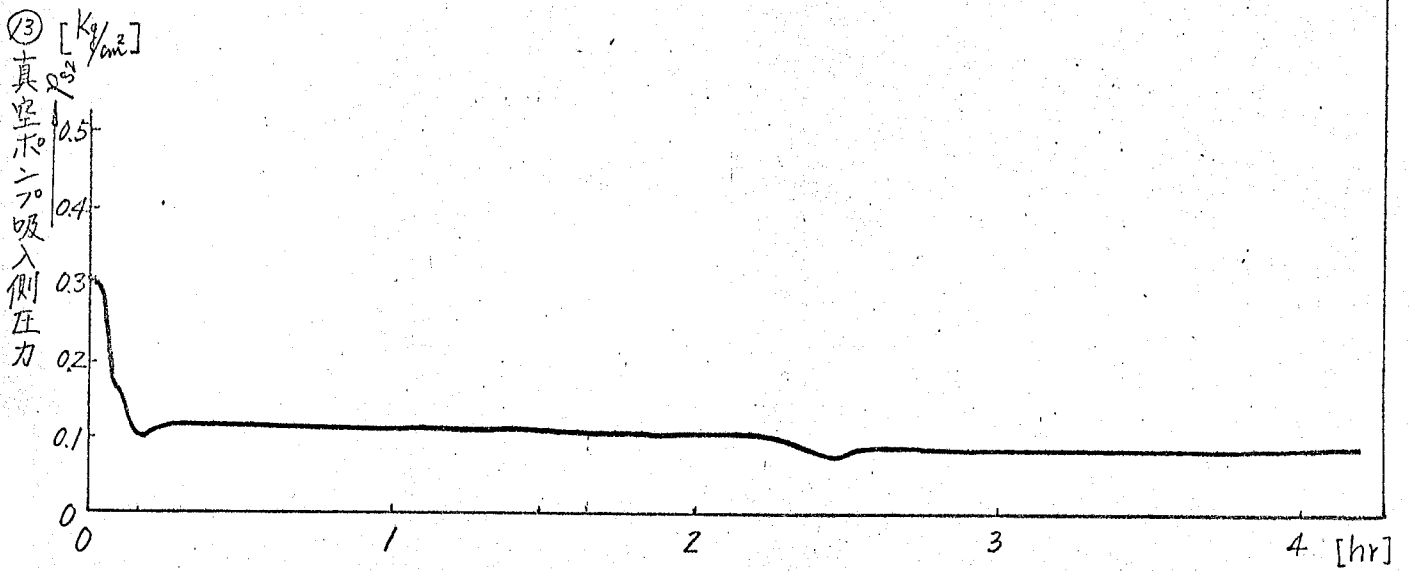
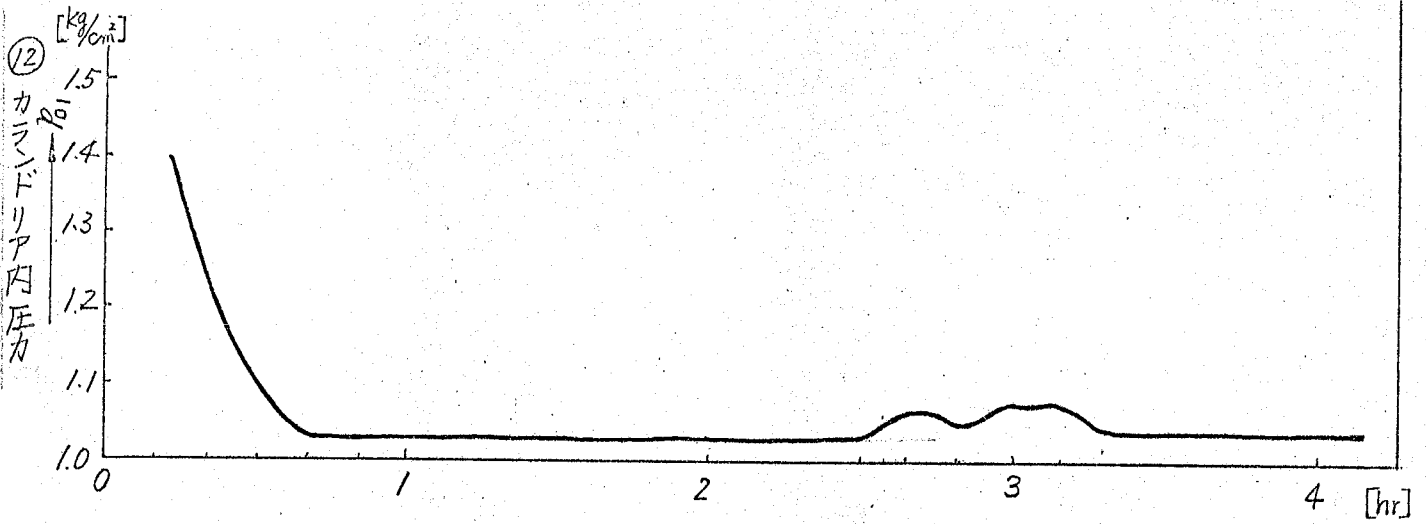


図 5-1.9 定常特性測定値 (その1)









を 2°C の水とともに分液ロートで分離し、残渣の結晶分を乾燥して秤量した値である。このとき、マスクットの半量の試料を顕微鏡で観察し、結晶粒度、擬晶の発生、双晶塊晶の生成状態などを確認した。写真5-1がそれで、各サンプリング試料ごとに1枚ずつ掲載し、天度を附した。写真5-1で見られるように、実験された仕込み分の結晶状態は良好である。仕上り結晶を篩分して粒度分布および平均粒度、偏差係数などを求め、表5-1.3に示した。なお、表5-1.3にはその他の集計データも記した。

これらの実験結果を用いて以下に示すような定常特性の検証を行った。

(i) 排気系統の特性

4-1.1および4-1.2節において得られた排気系統の定常特性式を図5-1.9の実験値を用いて検証し、混合凝縮係数 K_c の意味を明らかにする。

(4-1.5)式によつて、混合凝縮器の冷却水流量 w_{c1} と加熱蒸気流量 w_0 との関係は

$$w_{c1} = \frac{(h_{s1} - C_p \theta_{c2})(h_0 - 0.6C_p \theta_0 - 0.4C_p \theta_{m2})}{r_{m2}(\theta_{c2} - \theta_{c1})C_p} \cdot w_0 \quad (4-1.5)$$

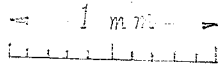
これを用いて操作要素としての混合凝縮器の定常特性を検証することができる。(4-1.5)式において、蒸発潜熱 r_{m2} の値は図5-1.10の濃度-エンタルピー線図を用いて計算できる。実験値の検証は定常状態において行われなければならないから、各操作期の初頭に見られる過渡的な状態を除いた区間を選んだ。表5-1.4にその結果を示す。(4-1.5)式で計算した理論値と実測値との差はいずれも4%以下である。

つぎに、4-1.1項で述べたように、操作入力としての冷却水流量に対する排気速度の過渡特性が再現性に乏しい原因として、(4-1.8)式の伝達関数に含まれる混合凝縮係数 K_c の値が冷却水流量の変動に対してかなりの動揺があり、冷却水は混合凝縮器内で定常性のよくない流れ方をしていることを筆者は指摘したが、このことを実測値にもとづいて明らかにすることができた。すなわち表5-1.5がそれで、 K_c の値にかなりのばらつきが見られ、再現性の乏しいことを表わしている。ただし、混合凝縮係数 K_c の算出は、(4-1.6)式と(4-1.7)式を用いて、次式によつた。

$$K_c = \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) w_{c1}}{(p_{s1} - p_{c2})(h_{c1} - h_{c2})}$$

ここで検証したこれら2つの事項を通じて、混合凝縮器の操作部としての特徴が明らかにされた。すなわち、真空結晶缶の缶内真空度を所定の値に保つために

(ニタール)



同左

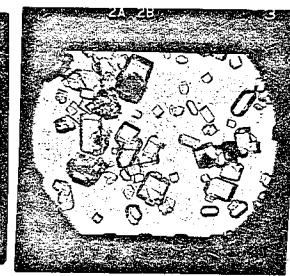
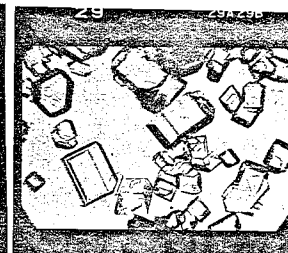
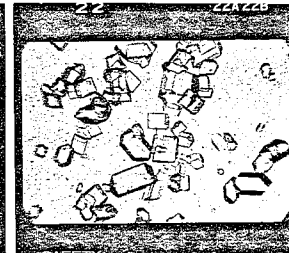
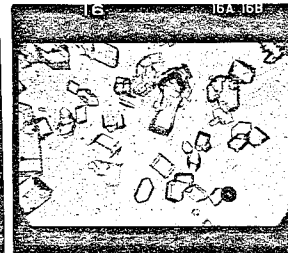
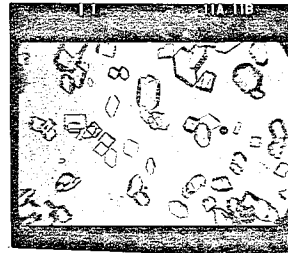
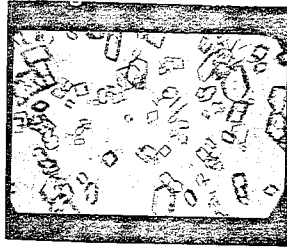
同左

同左

同左

同左

同左



15分

25分

35分

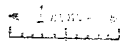
45分

55分

1時間5分

1時間15分

同左



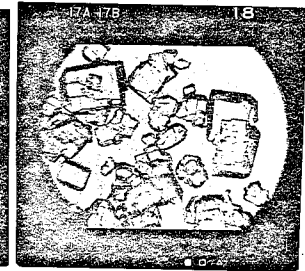
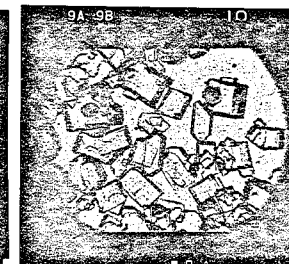
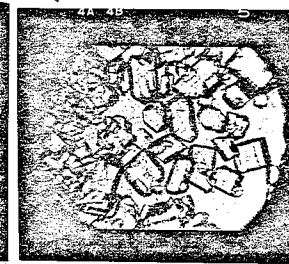
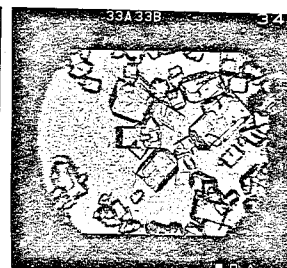
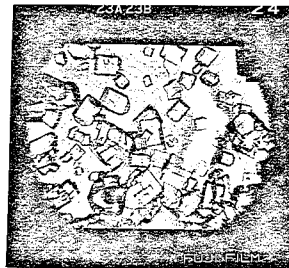
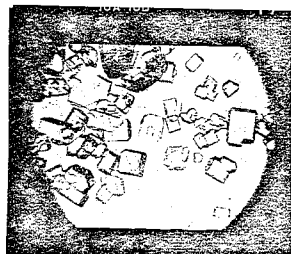
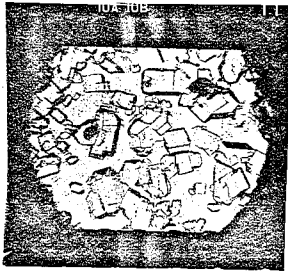
同左

同左

同左

同左

同左



1時間25分

1時間55分

1時間45分

1時間55分

2時間5分

2時間15分

2時間25分

同左

同左

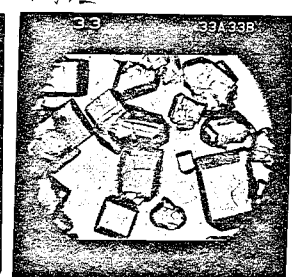
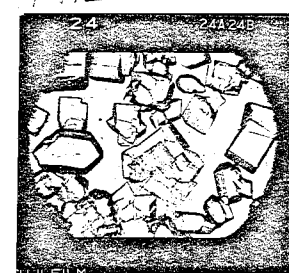
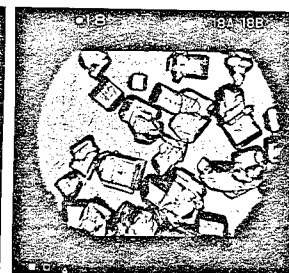
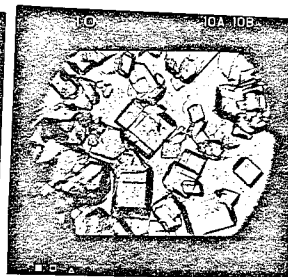
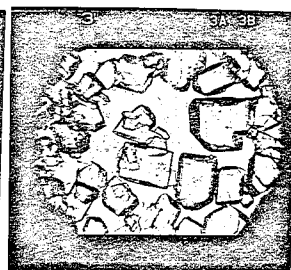
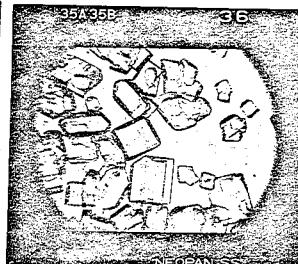
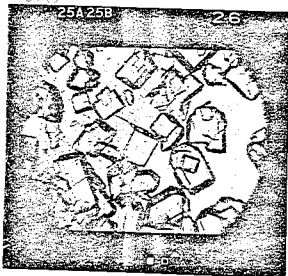
同左

同左

同左

同左

同左



2時間25分

2時間45分

2時間55分

3時間5分

3時間15分

3時間25分

3時間35分

写真 5-1 結晶の成長経過

表5-1.3 製品集計表

糖種	グラニュー糖		
炊上量	31.5 (m ³)		
リカー吸込量	44 (m ³)		
差水量	55.4 (m ³)		
種吸込量	1.4 (Kg)		
煎糖所要時間	4時間10分		
結晶	平均粒径* 偏差係数	M.A.=445(μ), C.V.=28.3(%)	
	粒度分布	0 ~ 20 ^μ	0.5 %
		20 ~ 24	2.0
		24 ~ 30	27.5
		30 ~ 35	30.0
		35 ~ 40	12.2
		40 ~ 45	6.7
		45 ~ 50	14.0
		50 ~ 60	3.2
		60 以上	3.7

(*)

M.A.=mean aperture C.V.=coefficient of variation

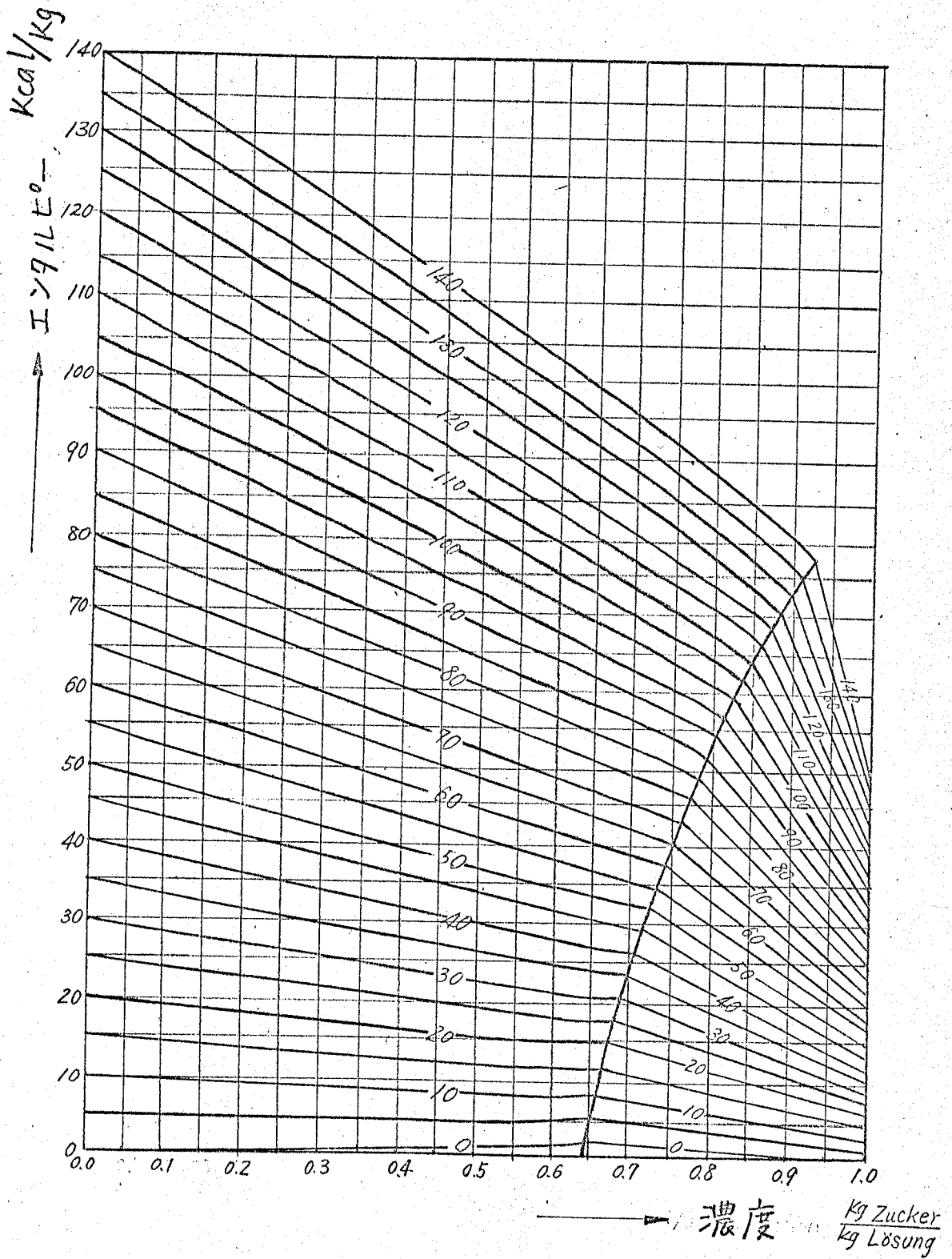


図 5-1.10 蔗糖溶液の濃度-エンタルピー曲線
 (T. Baloh, Zucker, 15, p.444, 500, (1962)より)

表 5-1.4 排気系統の特性の検証

期 間 (開始時からの時間)	濃 縮 期 (20~35分)	起 晶 期 (70~80分)	育 晶 期 (130~140分)
加熱蒸気のエンタルピー h_0 [Kcal/Kg]	653	652	647
加熱蒸気の温度 θ_0 [°C]	135	137	125
加熱蒸気流量 W_0 [Kg/hr]	5,620	5,500	5,840
母液(又はマスク)温度 θ_{m2} [°C]	49	51.5	55.0
母液(又はマスク)の 蒸発潜熱 [Kcal/m ²] [Kg]	587	617	658
缶内蒸気のエンタルピー h_{s1} [Kcal/Kg]	618	619	619
冷却水入口温度 θ_{c1} [°C]	28.5	28.5	28.5
冷却水出口温度 θ_{c2} [°C]	41.5	44.5	45.5
(4-1.5)式で計算した 冷却水流量(理論値) [Kg/hr]	2.37×10^5	1.76×10^5	1.65×10^5
冷却水流量(実測値) [Kg/hr]	2.29×10^5	1.94×10^5	1.80×10^5

表 5-1-5 混合凝縮係数 K_c の実験値

$$K_c = \frac{W_{c1} \cdot (\theta_{c2} - \theta_{c1})}{(P_{s1} - P_{c2})(h_{s1} - h_{c2})}$$

NO	冷却水 流量 W_{c1} [kg/hr]	冷却水 温度差 $\theta_{c2} - \theta_{c1}$ [°C]	缶内真空度 P_s [mmHg]	冷却水 出口温度 θ_{c2} [°C]	凝縮潜熱 $h_{s1} - h_{c2}$ [Kcal/kg]	混合凝縮 係数 K_c [kg/mmHg·hr]
1	2.29×10^5	13	75	41.5	575.5	3.6×10^2
2	1.94×10^5	16	74	44.5	572.5	10.9×10^2
3	2.05×10^5	17	78	45.5	571.5	12.2×10^2

設けられた混合凝縮器は、(4-1.5)式に示されるように、定常的な操作状態すなわち真空結晶装置全体が定常運転されているときはとくに支障なく使用できるが、これを缶内真空度制御の操作要素として使用するときには再現性と安定性に欠けるうらみがある、という事が明白に実証できた。

(ii) 濃縮期における過飽和度の上昇特性

4-1.4項における解析結果によると、濃縮期の過飽和度は(4-1.40)式に沿って上昇する。実験を行なったところ、図5-1.9④に見られるような上昇曲線が得られたので、この測定値にもとずいて理論式(4-1.39)式および(4-1.40)式を検証する。

濃縮期間内における加熱蒸気流速 w_0 および母液温度 θ_{m2} は、図5-1.9⑧⑩に見られる通り、ほぼ一定であるから(4-1.40)式の代りに濃縮式(4-1.39)式を用いて差支えない。

$$C_{m2} = C_{m2}^* \left(1 + \frac{Q}{V_m^{(0)} \delta_{m2}^* \gamma_{m2}} \cdot t \right) \quad (4-1.39)$$

ただし

$$Q = (k_0 - 0.6C_1\theta_0 - 0.4C_1\theta_{m2}) w_0 \quad (4-1.4)$$

ここでは実験値を濃度 C_{m2} の変化として表現する。図5-1.11は図5-1.9④の濃縮期を拡大したもので、濃度 C_{m2} の時間的推移を示している。この図の区間の数値は、水の比熱： $C_1 = 1$ [Kcal/Kg·°C]

$$\text{加熱速度： } Q = 3.11 \times 10^6 \text{ [Kcal/hr]}$$

$$\text{母液容積： } V_m^* = 16.5 \text{ [m}^3\text{]}$$

$$\text{比重量： } \gamma_{m2}^* = 1.375 \times 10^3 \text{ [Kg/m}^3\text{]}, \text{ (平均濃度 } 74^\circ\text{BX として)}$$

$$\text{蒸発の潜熱： } r_{m2} = 587.5 \text{ [Kcal/kg]}, \text{ (平均濃度 } 74^\circ\text{BX として)}$$

$$\text{初期濃度： } C_{m2}^* = 71.5 \text{ [}^\circ\text{BX]}$$

$$\text{濃縮期の時間： } t = 17.6 \text{ [min]}$$

上記の数値を用いて(4-1.39)式を計算すると、濃縮期終了時の濃度 C_{m2} は

$$C_{m2} = 71.5 \left(1 + \frac{3.11 \times 10^6}{16.5 \times 1.375 \times 10^3 \times 587.5} \times \frac{17.6}{60} \right)$$

$$= 71.5 \times 1.068$$

$$= 76.4 \text{ [}^\circ\text{BX]}$$

(理論値)

これに対する実測値は

$$C_{m2} = 76.1 \text{ [}^\circ\text{BX]}$$

(実測値)

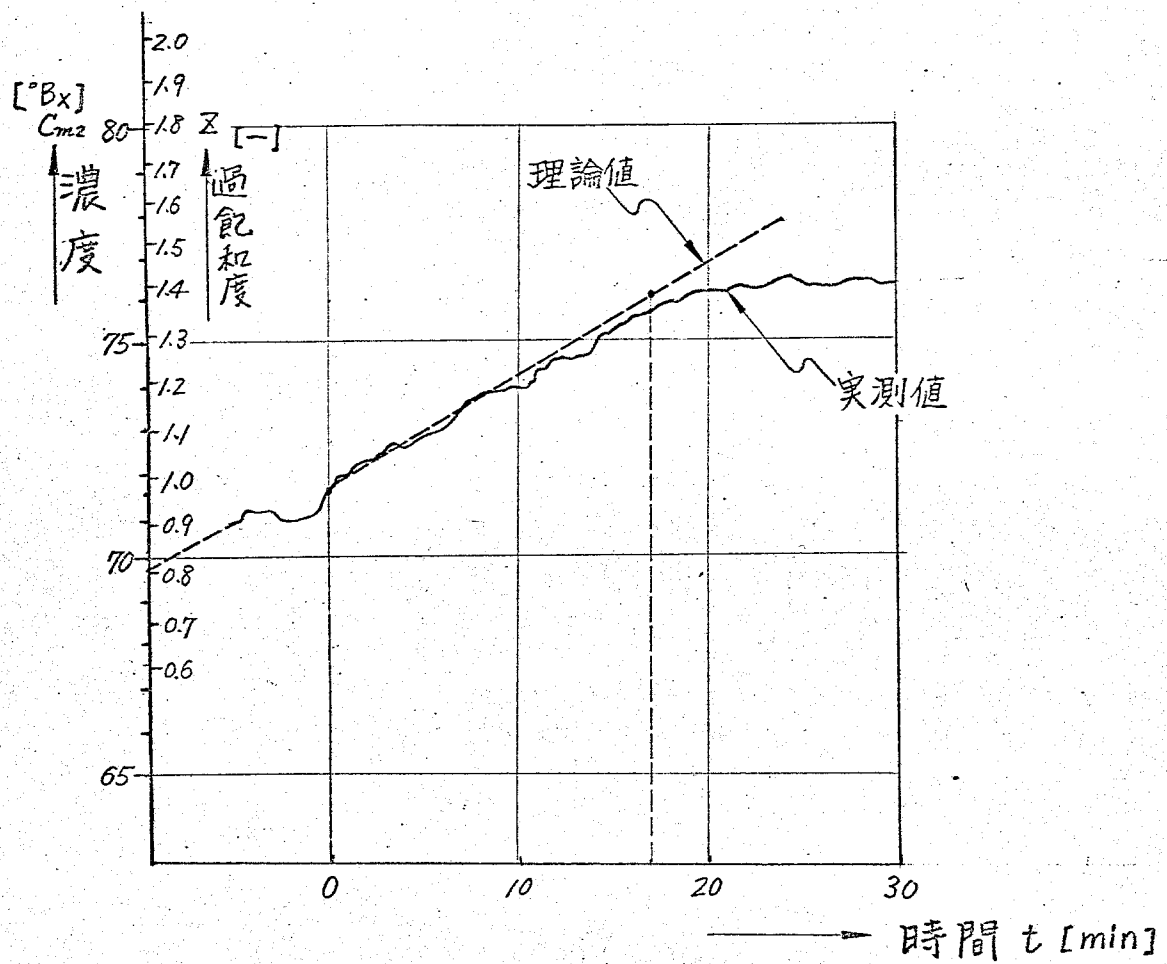


図 5-1-11 濃縮期における濃度

このように両者はかなりの一致を示した。なお(4-1.39)式で求めた過飽和度上昇の理論値を図5-1.11に点線で併記した。この図によって、理論値とかなりの精度で一致することが明らかにあった。

(iii) 結晶成長速度

定常状態すなわち母液の過飽和度 Σ および温度 θ_{m2} が定値に保たれているとき、結晶粒子径 d は理論的に次式のように時間に比例して成長することを検証する。

$$d = K_j t + d_0$$

ただし

$$K_j = \frac{K_s M \alpha_s}{3 \alpha_v \gamma_d} (\Sigma - 1) \quad (4-2.18)$$

この関係式はいわゆる ΔL 法則と同じ内容を示しているが、実規模の回分式結晶缶においてもこの法則が成立することを検証し、さらにこれを元にして導いた操業所要時間の推定式

$$t = \frac{1}{K_j} (d_2 - d_1) \quad (4-2.19)$$

の成立範囲を確かめる。

すでに5-1.2項で説明した方法によって得た操業中の結晶粒子径 d 、結晶容積分率 ϕ_c およびカタセを表5-1.6および図5-1.12に示した。この表および図は図5-1.9②③③'およびその数値をもとにして得たものである。

また結晶粒子の平均粒子径は、図5-1.12に示したように、時間に比例して増大することが明らかであり、(4-2.18)式を満足することが確かめられた。

このとき比例係数 K_j の各項は、蔗糖の結晶粒子が立方体であると仮定して、

$$\text{表面積係数: } \alpha_s = 6, \quad \text{体積係数: } \alpha_v = 1$$

$$\text{結晶の比重量: } \gamma_d = 1.555 \times 10^3 \text{ [kg/m}^3\text{]}$$

$$\text{過飽和度: } \Sigma = 1.35 \text{ [-]}$$

とすると実測値から求められた K_j の値は

$$K_j = 6.90 \times 10^{-5} \text{ [m/hr]} \quad \text{であるから、攪拌係数 } M \text{ を含めた結晶成長速度係数 } K_s \text{ の値は}$$

$$K_s M = \frac{3 \times 1 \times 1.555 \times 10^3 \times 6.9 \times 10^{-5}}{6 \times (1.35 - 1)}$$

$$= 0.153 \text{ [kg/m}^2\text{/hr]}$$

表 5-1.6 定常操業中の結晶粒径, 容積分率およびカタサ

NO.	時刻 (操業開始後)	結晶重量比(ϕ_w) (g.crystal/g.massecuite)	マスキット容積 (V_m) m^3	結晶容積比 (ϕ_v)	平均粒径 (d) μ	カタサ
1	80 分	3.89	14.0	0.359	294	22.5
2	90 分	4.12	13.8	0.381	298	24.0
3	100 分	4.24	15.0	0.393	319	26.0
4	110 分	4.45	16.0	0.413	321	28.0
5	120 分	4.38	17.0	0.407	327	28.0
6	130 分	4.87	18.6	0.455	349	32.0
7	140 分	4.61	21.7	0.429	367	37.0
8	150 分	4.82	23.6	0.449	376	40.0
9	160 分	4.95	25.6	0.463	382	45.0
10	170 分	5.04	27.0	0.472	400	50.0
11	180 分	5.10	28.0	0.478	407	56.0
12	190 分	5.28	29.4	0.495	419	63.0
13	200 分	5.45	30.5	0.513	430	71.0
14	210 分	5.23	32.0	0.490	436	80.0
15	220 分	5.96	31.8	0.564	449	80.0

(計算式)

蔗糖の比重量 $\gamma_d = 1.5545$ [g/cc], 蔗糖溶液の比重量(振密) $\gamma_{m2} = 1.365$ [g/cc]
 ただし, $\theta_{m2} = 51$ [°C] $C_{m2} = 75$ [°Bx] とした。

$$\phi_v = \phi_w' / (11.379 - 0.1368\phi_w')$$

$$d = \sqrt[3]{V_d/n} = \sqrt[3]{V_m \cdot \phi_v / n}$$

結晶粒子数 $n = 1.98 \times 10^{11}$ (実測)

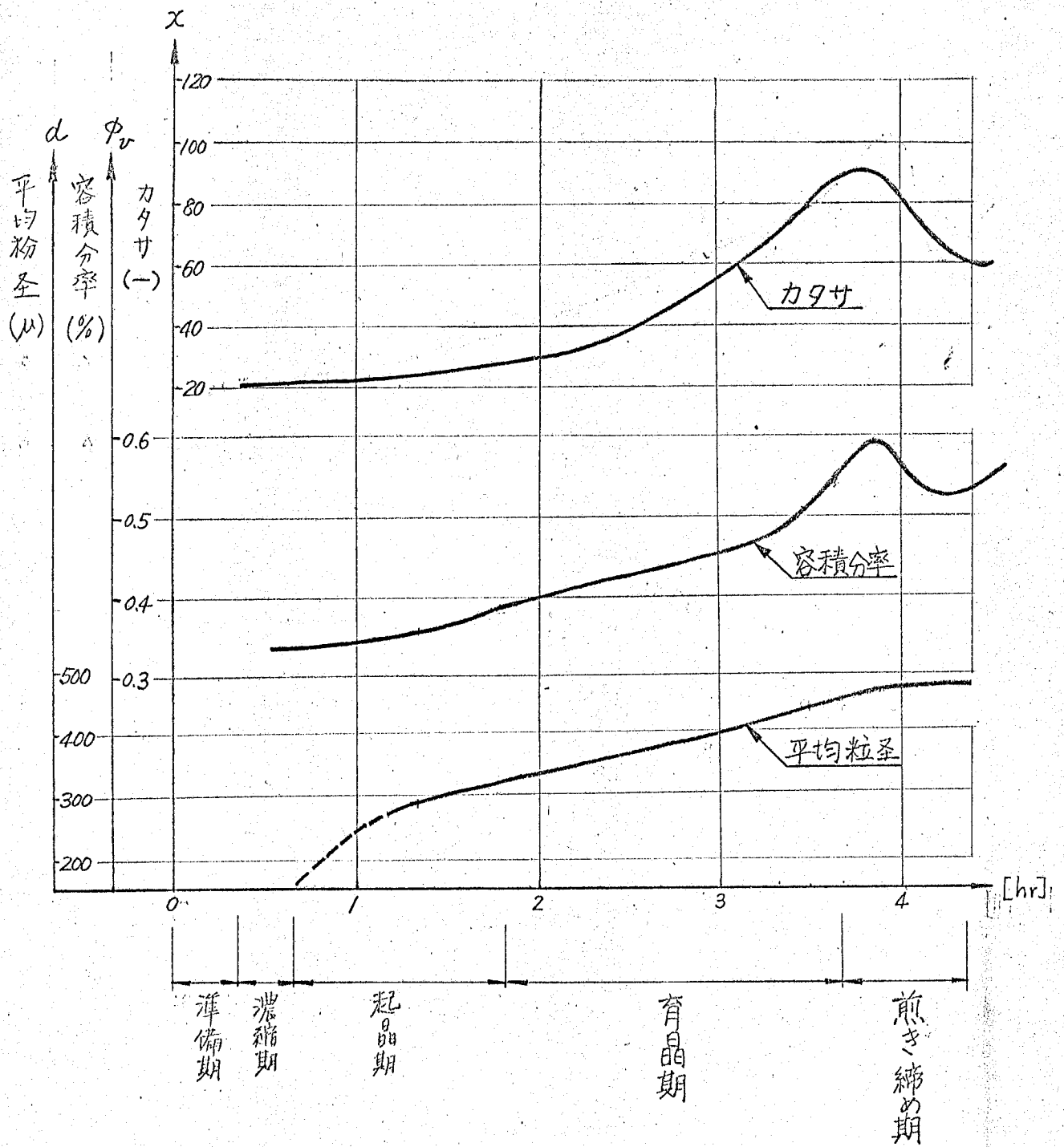


図 5-1.12 定常操業中の結晶粒径・容積分率およびカタサ
(表 5-1.6 参照のこと)

この係数値は攪拌係数を含めた平均値であるから、一般のカランドリア形結晶缶に共通して成立すると解釈することには多少の無理があるが、筆者が実験した蔗糖用結晶缶と同形式で同じくらいの容量のものについてはかなり一般性のある数値であると考えられる。なお、ICUMSA^(*)が推奨する Kucharenko のデータによると同じ場合について $K_s = 0.2436$ [kg/m²/hr] が与えられているが、この値は純糖率100%の蔗糖溶液を充分攪拌した場合の実験データであるから、その値を筆者の実験値と比較することはできない。

つぎに平均粒径の成長速度式(4-2-18)式の成立範囲について考察する。図5-1-12で見られるように粒径 d を起晶期後半からの測定値にもとづいて記入した。しかし種入れから起晶期前半にかけては結晶粒子径は微小であり、測定値の精度が保証できなかったから記入しなかった。そこで別に求めた結晶種の平均粒径を用いて起晶期前半の粒径の変化をほぼ推定によって点線で連ねたところ、この区間の成長速度は起晶期後半以降よりもかなり大きいことが明らかになった。このような現象はすでに結晶学の分野で指摘されていることで、⁽⁴⁾ 筆者の予想するところでもあった。その原因は、機械的粉碎機により微細化された結晶粒子の表面活性度が異常に高く付いていることや、種入れ直後における新しい粒子の晶出が避けられにくいことなどがあげられている。さて、これとは逆に煎き締め期における成長速度は図に示したように次第に減少している。この原因は水煎き時における大量の温水注入によって過飽和度がかなり低くなったためと思われる。したがって、以上の考察によって(4-2-18)式の関係およびそれから導かれた(4-2-15)、(4-2-16)、(4-2-20)式及び育晶所要時間を求める(4-2-19)式などの成立期間は起晶期後半と育晶期の全期間に限定せねばならないことが明らかになった。

本実験における以上の成立期間、操業開始後90分から220分の期間、における平均粒径 d の成長関数(4-2-18)式は、初期値 $t = 90$ [分] において $d_0 = 28.8 \times 10^{-5}$ [m] を用いて

$$d = (6.90t + 28.8) \times 10^{-5} \text{ [m]} \quad (5-1-1)$$

結晶分の重量成長速度 j_{dw} は(4-2-20)式を用いて

(*) International Commission for Uniform Methods of Sugar Analysis の略

$$j_{dw} = 6.38 (6.90t + 28.8)^2 \quad [\text{kg/hr}] \quad (5-1.2)$$

結晶分の総容積 V_d は (4-2.16) 式を用いて

$$V_d = 1.98 (6.90t + 28.8)^3 \cdot 10^{-4} \quad [\text{m}^3] \quad (5-1.3)$$

ただし、時間 t の原点は操業開始後 90 分において $t=0$ とし、単位は $[\text{hr}]$ とした。また、つぎに育晶所要時間を与える式 (4-2.19) 式は

$$t = 1.45 \times 10^4 (d_2 - d_1) \quad [\text{hr}] \quad (5-1.4)$$

この関係式の成立範囲も上述の通りである。ただし、粒径 d_1, d_2 の単位は $[\text{m}]$ とする。

(IV) カタサの特性

マスクットのカタサという量が結晶缶の制御量の一つとして重要なことは明らかにあるが、この量は粒度のじとく純粹な物理的に定義できる量ではなく、多分に曖昧さを含む経験量であること、したがってその値が測定手段と方法に大きく関係することはすでに述べた。本論文ではカタサを表現する式として (4-3.8) 式を基礎においたが、この関係式がもともと実験室的な研究の結果得られたものであるにも拘らず、結晶缶のマスクットのカタサをあらわす関係式として十分に成立することが明らかになった。すなわちカタサの基礎式は

$$\alpha = \alpha_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 \phi_v}{1 - k_2 \phi_v} \right\} \quad (4-3.8)$$

である。これは懸濁液粘度に関する Robinson の式であるが、この式によってマスクットのカタサを表わすことができる。⁽⁵⁾ ただし、この報告は小規模なベンチスケールの実験結果であり、測定器としては Brookfield 形回転粘度計を用い、結晶容積分率 ϕ_v についての成立範囲は $\phi_v = 0 \sim 0.4$ であると言われている。一方、筆者が行った実規模の結晶缶についての実験では回転羽根式カタサ計を用い、またマスクットの結晶容積分率は 0.6 にまで増大している。しかしこのような場合についても (4-3.8) 式を基礎としてカタサを表現できることを示す。

実験を行った蔗糖用の回分式真空結晶缶では、マスクットの結晶容積分率はほとんど 0 (起晶直後) から 0.6 くらいまで変化する。しかしマスクットのカタサを検出し制御する必要のある期間は育晶期およびそれ以降であるから、本実験ではこの期間に対応する結晶容積分率 ϕ_v の変化範囲、 $\phi_v = 0.3 \sim 0.6$ 、について測定できるようにあらかじめカタサ計を設定しておいた。したがって、以下に示す実験結果は定常操業時における上記範囲内で得られたものである。なお、結晶期の結晶容積分率の低い起晶期のカタサを同じカタサ計によって

測定することを試みるためとくに測定器の感度を上げて予備実験を行なったが、主として回転軸受部の摩擦トルクが測定値の誤差として入ってくるため成功しなかった。

実験値を整理し易くするため(4-3・8)式を変形して

$$\frac{\phi_u}{\left(\frac{x}{x_0} - 1\right)} = \frac{1}{k_1} (1 + k_2 \phi_u) \quad (5-1.5)$$

したがって、もし(4-3・8)式が成立するならば上式(5-1.5)式の関係によって左辺 $\phi_u / (\frac{x}{x_0} - 1)$ の値と ϕ_u の値とが直線関係にあるはずである。実験値を用いて表5-1.7に示した計算を行ない、これを図にしたのが図5-1.13である。ただし、 x_0 の値、すなわち $\phi_u = 0$ における母液のカタサに相当する値、はあらかじめ予備実験を行ない、 $x_0 = 6.3$ を得たのでこの数値を用いた。図に見られるように、 $\phi_u / (\frac{x}{x_0} - 1)$ と ϕ_u との間には直線関係があり、この図をもとに、(5-1.5)式の係数を求めることができた。すなわちヤニ軸との交点が $1/k_1$ の値を与え、ヨコ軸との交点が $1/k_2$ の値を示す。

$$k_1 = \frac{1}{0.367} = 2.73$$

$$k_2 = \frac{1}{0.564} = 1.77$$

ゆえに本実験で用いた回転羽根式カタサ計によるカタサの関係式は

$$x = 6.3 \left\{ 1 + \frac{2.73 \phi_u}{1 - 1.77 \phi_u} \right\} \quad (5-1.6)$$

つぎはこの式の実験的に求めた係数値について吟味を行おう。まず、 $x_0 = 6.3$ という値は母液の種類と状態によって定まる量であり、この場合は蔗糖液(純糖率96.6%, 糖度85.0%)を温度52°C, 過飽和度1.35の条件に保った場合のカタサ計についての特定の値である。つぎに、 k_1 は一般に母液には関係なく、分散粒子すなわち結晶粒子の形状と物性値に関係する値であると言われており、森・乙竹によると次式で計算できる、と言われている。⁽⁶⁾

$$k_1 = \frac{1}{2} d \times S_r \quad (5-1.7)$$

(ただし、 S_r は容積基準の比結晶面積、 d は粒径)

もし、結晶粒子を立方形と仮定すれば、 $S_r = 6d^2/d^3 = 6/d$, $\therefore k_1 = 3$ となる。ところが筆者の実験によると、 $k_1 = 2.73$ と行っているから、(5-1.7)式をそのまま適用すると、 $S_r = 27.3 \sim 13.6 [mm^{-1}]$ ($d = 0.2 \sim 0.4 [m.m]$)

表5-1.7 (5-1.5)式の数値計算

操業開始 後の時間 t	カタサ x	結晶容積分率 ϕ_r	$\phi_r/(x-1)$
80分	22.5	0.355	0.1400
90分	24.0	0.365	0.1250
100分	26.0	0.380	0.1220
110分	28.0	0.390	0.1120
120分	28.0	0.395	0.1150
130分	32.0	0.406	0.0995
140分	37.0	0.420	0.0860
150分	40.0	0.430	0.0804
160分	45.0	0.440	0.0720
170分	50.0	0.452	0.0652
180分	56.0	0.465	0.0590
190分	63.0	0.480	0.0533
200分	71.0	0.490	0.0480
210分	80.0	0.504	0.0430

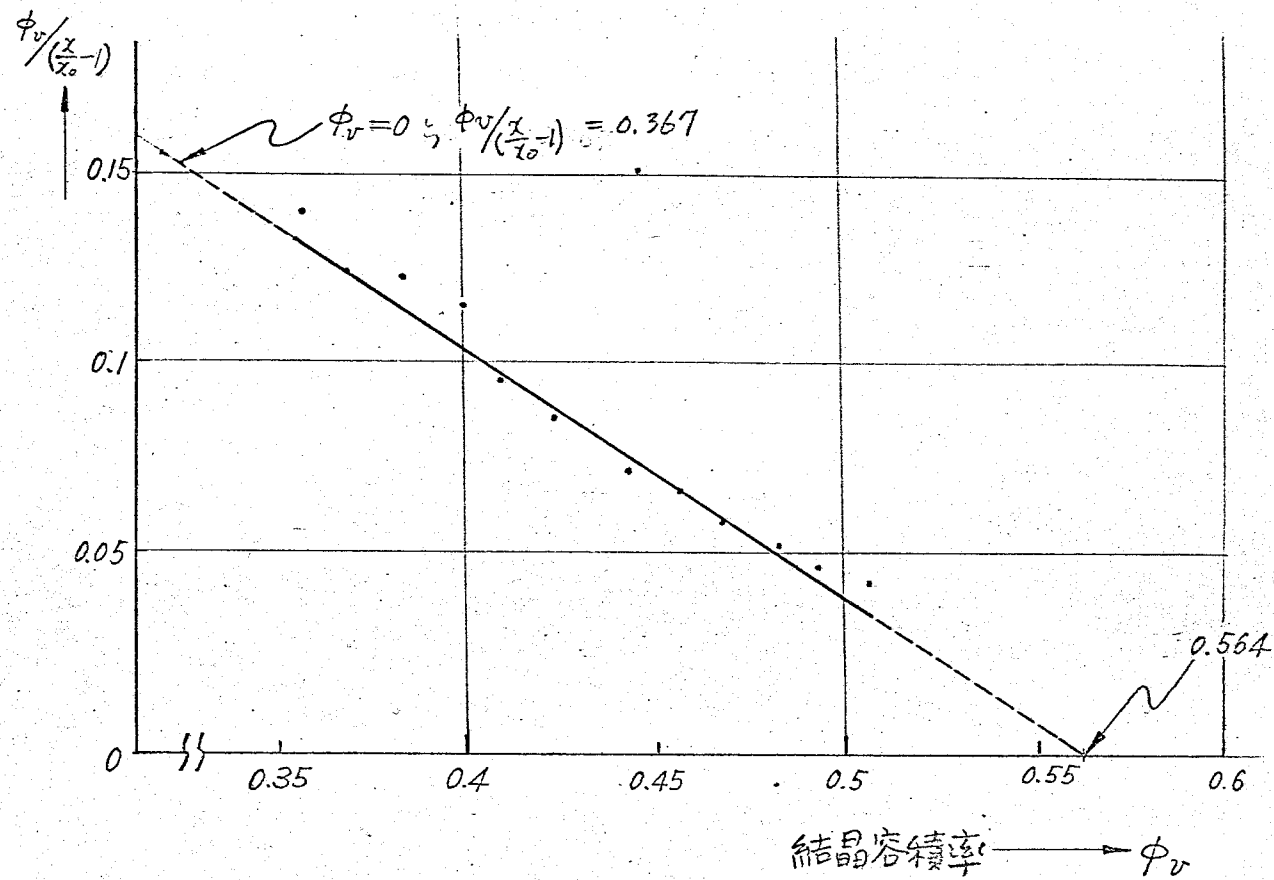


図 5-15/3 (5-15) 式の直線関係

とより、同じ粒径についての立方体仮定の場合の値 $S_r = 30 \sim 15$ [$m m^{-1}$] と比較すると約 12% ほど小さい値を示している。このことは、筆者が行なった実験における結晶粒子の形状が立方体から少し偏奇を示しており、顕微鏡写真(5-1)に見られるような長方柱形であることの傾向を物語っている。最後に、 t_2 の値は分散粒子の沈降容積比すなわち完全に粒子が沈降したときの有効なマスク容積を v_c とすれば、

$$t_2 = \frac{v_c}{v_d}$$

で与えることができると言われている。⁽⁷⁾ 筆者の実験値によると $t_2 = 1.77$ すなわち $(t_2)^{-1} = 0.564$ であるから、実験に供したマスクについては結晶容積が 56.4% を越えると結晶粒子は沈降しはじめを示している。同じ蔗糖液で ϕ_w が非常に小さい希薄な懸濁液についての従来の研究によると、 $(t_2)^{-1}$ の値は 40~50% と言われているが、⁽⁸⁾ 実験方法や蔗糖溶液の組成などの違いを考慮すれば筆者の実験値はこれなりに妥当な値であると思われる。

(V) 煎き締め期におけるカタサの変化

つぎに煎き締め期におけるカタサの特性を検証する。煎き締め期における2つの操作、水煎き操作および煎き締めの操作によるカタサの変化はそれぞれ温水注入(差し水の注入)をステップ状に加えたときと閉止したときの過渡的な応答に相当している。この期間のカタサは制御されておらず単に両操作の開始時と終了時におけるカタサの値がシーケンス信号として用いられているだけであるから、強いてこの項で取扱うことにする。

煎き締め期におけるカタサの特性実験値を図5-1.14に示した。(これは図5-1.12に示した実験値とは別のデータである点に注意。) 同図の、②に見られるようにカタサの変化はいずれもかなり急激である。③に示した結晶容積分率 ϕ_w は重量分析値 ϕ_w を用いて次のように計算した。

マスクの振蜜(母液)濃度: $C_{m2} = 71^\circ BX$,

同温度: $\theta_{m2} = 53^\circ C$,

同比重量: $\gamma_{m2} = 1.356 \times 10^3$ [kg/m^3],

結晶比重量: $\gamma_d = 1.554 \times 10^3$ [kg/m^3],

$$\therefore \phi_w = \frac{\phi_w}{(1 - \frac{\gamma_d}{\gamma_{m2}}) \phi_w + \frac{\gamma_d}{\gamma_{m2}} \times 10}$$

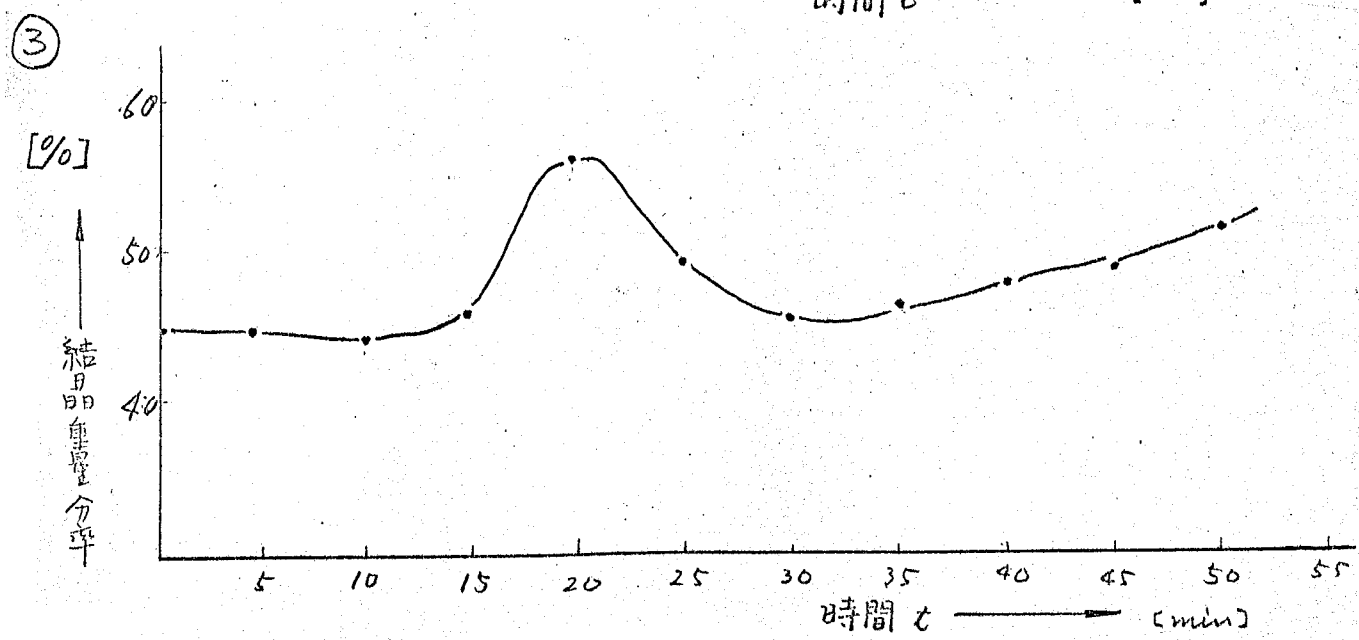
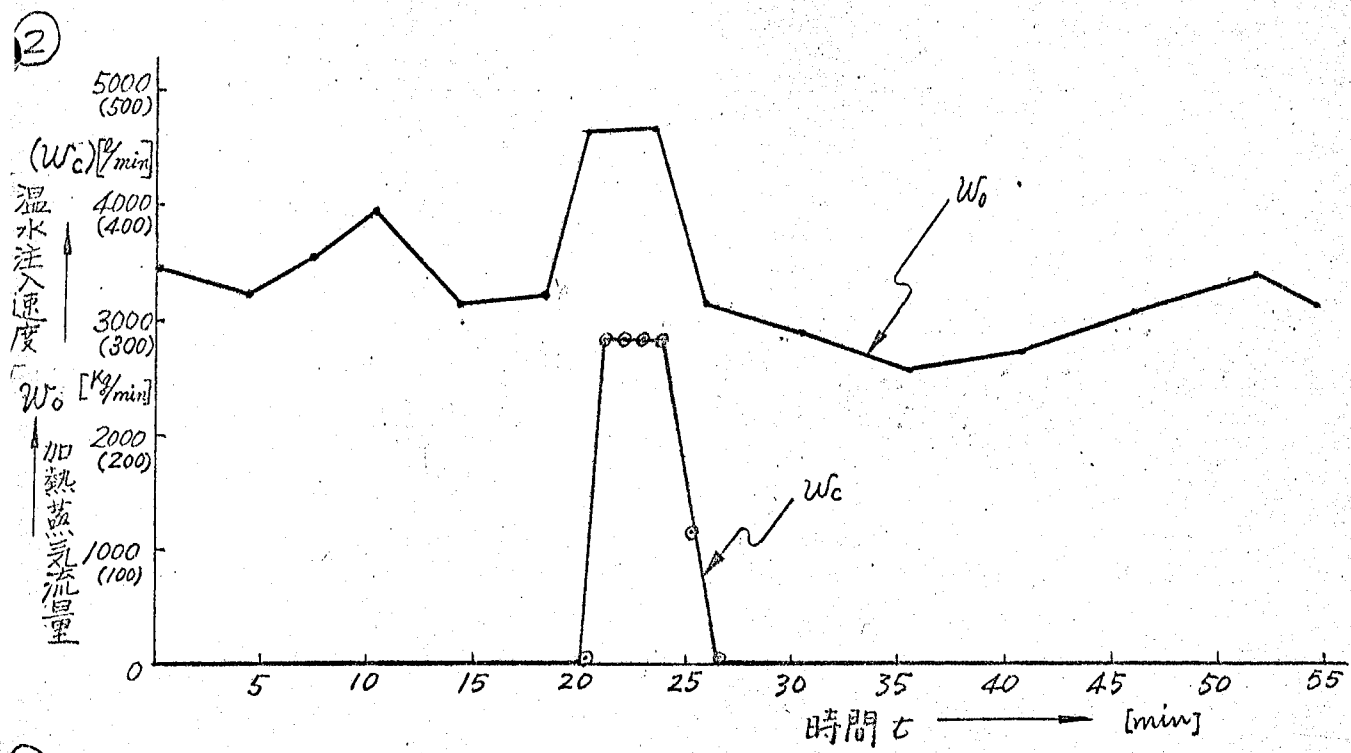
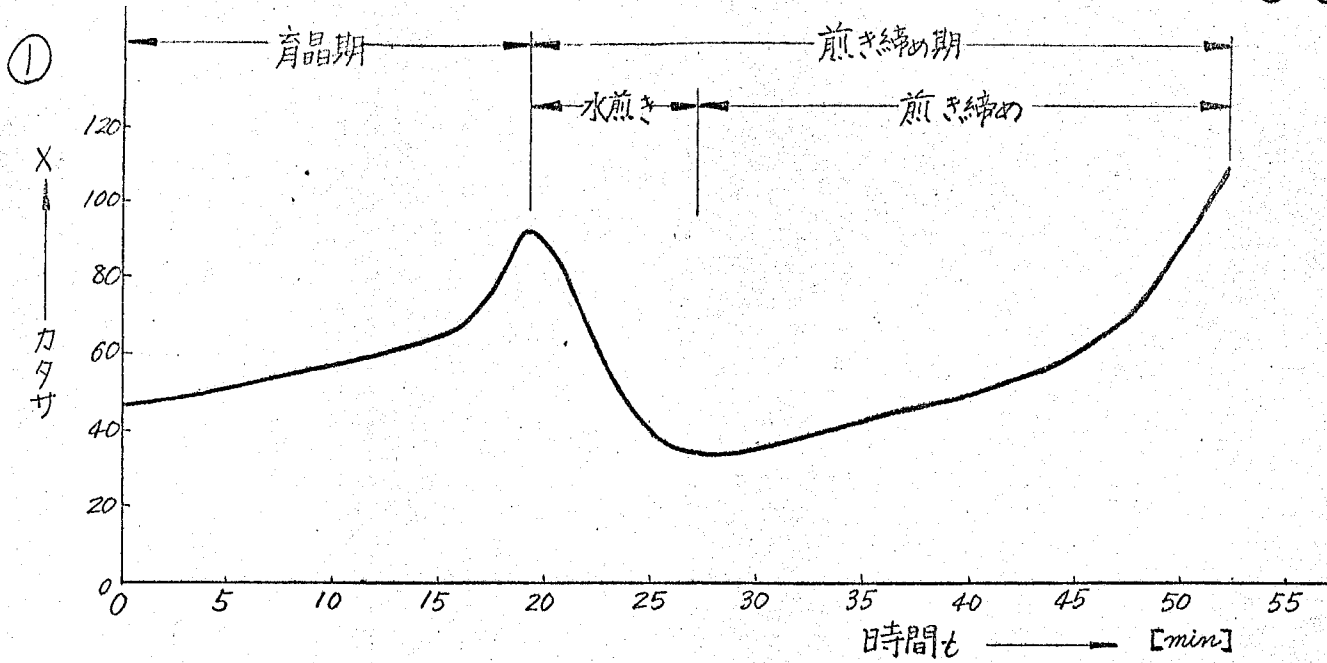


図 5-1.14 煎き締め期のカタサ実験

$$= \frac{\phi_w}{11.46 - 0.146 \phi_w}$$

また、水煎きによるカタサの低下は一連の理論式(4-3-37)~(4-3-41)式で表わされるが、ここでは(4-3-37)式を用いて実験値との照合を試みる。

$$x = x_0 \left\{ 1 + \frac{t_1 (V_d^* - j_{dl} t)}{V_m^* + W_c t - t_2 (V_m^* - j_{dl} t)} \right\} \quad (4-3-37)$$

水煎き開始時間 t^* 、終了時刻 t^{**} 、温水注入速度 W_c 、開始時のマスク容積 V_m^* 、同結晶容積 V_d^* 、下記の値を図5-1-14から読み取る

$$t^* = 4 \text{ 時 } 40 \text{ 分}, \quad t^{**} = 4 \text{ 時 } 45 \text{ 分}, \quad (t^{**} - t^* = 5 \text{ 分})$$

$$V_m^* = 31.0 \text{ [m}^3\text{]}, \quad V_d^* = 15.70 \text{ [m}^3\text{]}, \quad (\phi_w^* = 0.507)$$

$$W_c = 0.288 \text{ [m}^3\text{/min]}$$

偽晶の溶解速度 j_{dl} を求めるため t^* における結晶容積の実験値 $v_d^* = 14.43 \text{ [m}^3\text{]}$ を用い、溶解速度は水煎き期間中は一定と仮定すると

$$j_{dl} = \frac{15.70 - 14.43}{5} = 0.254 \text{ [m}^3\text{/min]} \quad (5-1-8)$$

さらにカタサの基礎式は前項の結果(5-1-6)式を用いる。これらの数値を用いると、まず水煎き開始時におけるカタサは(5-1-6)式を用いて

$$x^* = 6.3 \left\{ 1 + \frac{2.73 \times 0.507}{1 - 1.77 \times 0.507} \right\}$$

$$= 91.6$$

この理論値は図5-1-14②の実験値 $x^* = 93$ に非常に近い値を与えている。つぎに水煎き操作中のカタサを(4-3-38)式によって求めると

$$x = 6.3 \left\{ 1 + \frac{2.73 (15.70 - 0.254 t)}{31.0 + 0.288 t - 1.77 (15.70 - 0.254 t)} \right\} \quad (5-1-9)$$

ただし、時間 t の単位は[分]である。(5-1-9)式が水煎き中のカタサの変化を表す理論式である。時間 t を0~5分に比べて計算した値と実験値との比較を図5-1-15に示した。このように理論値は実験値とかなりの一致をみるこゝが分った。ここで水煎き終了時のカタサ(理論値)は、上式に $t = 5$ [分] を代入すれば求めるが、この値は言うまでもなく(4-3-37)式を用いた値と一致する。

$$x \Big|_{t=5} = 42.3$$

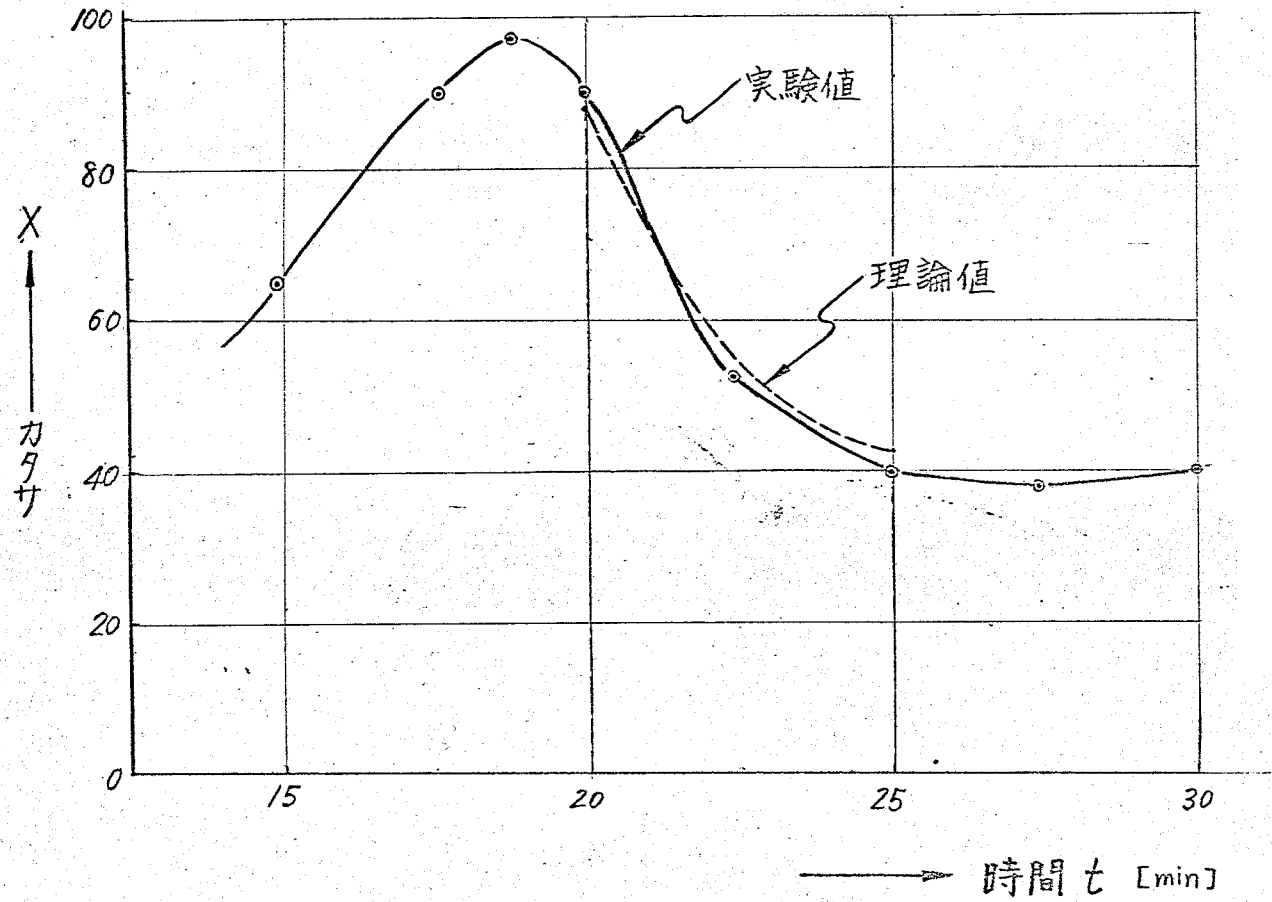


図 5-1-15 水煎き操作中のカタサの変化

この最終値は実験値 $x = 39.0$ より少し大きい。以上のように、水煎き操作中の実験のカタサはほぼ理論式(4-3.33)式に沿って変化すると考えて差支えないことが分った。ただし図5-1.15に示した実験値との対応で見られる部分的に不一致は、①注水開始直後における缶内のマスクットの場所的ばらばらがあること、②溶解速度 j_{dl} を推定によって求めたこと、③マスクットの蒸発による容積減少分を無視したこと、などが原因と考えられる。また(5-1.8)式に示した溶解速度(実験値)は予想外に高い値であるが、これは温水注入によって偽晶のみならず正常な結晶表面もいくらか溶解されたと解釈すれば肯定できる。これを裏付ける資料として同期間の結晶写真を写真5-2を示す。写真で明らかのように、水煎きを終了した時のマスクットには偽晶は極く僅かしかなく、結晶重量分率から求めた平均粒径は少し小さくはっているのがわかる。

つぎに煎き締め操作によるカタサの変化を同じ5-1.14図に示した実験によって検証する。図に見られるように、煎き締め操作によるカタサの上昇速度は水煎き操作によるカタサの低下速度と同様に大きい。煎き締め開始時のマスクットの状態を図5-1.14から読み取ると

$$\text{開始時刻 } t^* = 4 \text{ 時 } 48 \text{ 分}$$

$$d^* = 443 [\mu], \quad V_d^* = 14.43 [m^3], \quad V_m^* = 32.8 [m^3]$$

$$\phi_v^* = 0.441, \quad x^* = 39.0$$

$$\text{終了時刻 } t^{**} = 5 \text{ 時 } 10 \text{ 分}$$

$$d^{**} = 460 [\mu], \quad V_d^{**} = 16.25 [m^3], \quad V_m^{**} = 32.5 [m^3]$$

$$\phi_v^{**} = 0.50, \quad x^{**} = 90.0$$

$$t = t^{**} - t^* = 22 [\text{min}]$$

$$\text{加熱蒸気流量: } W_0 = 2.5 [m^3/\text{hr}] \text{ (平均)}$$

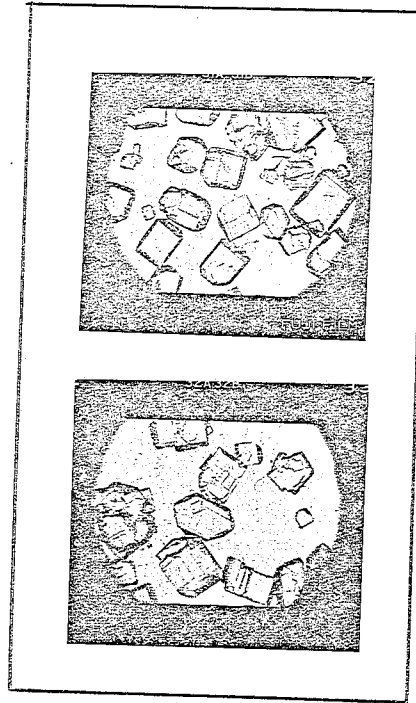
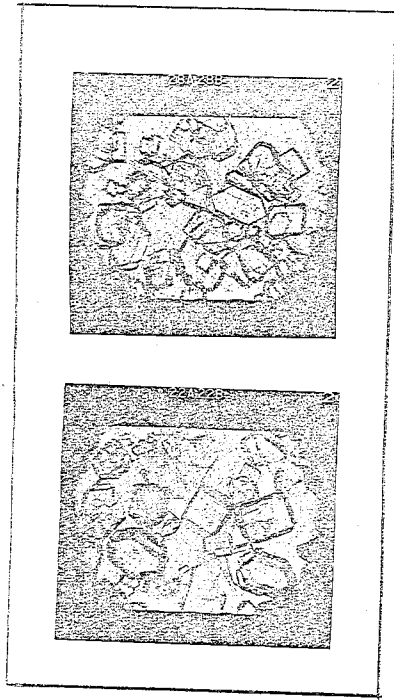
$$\text{蒸気温度: } \theta_0 = 135 [^\circ\text{C}]$$

$$\text{マスクット温度: } \theta_{m2} = 53 [^\circ\text{C}]$$

煎き締め操作中のカタサの変化は理論的に(4-3.33)式で表わすことができる。

$$x = x_0 \left\{ 1 + \frac{k_j V_d^* \left(1 + \frac{k_j}{d^* t}\right)^3}{V_m^* - \int_0^t \frac{(h_0 - 0.6\theta_0 - 0.4\theta_{m2}) W_0}{r_{m2}} dt - k_2 V_d^* \left(1 + \frac{k_j}{d^* t}\right)^3} \right\} \quad (4-3.33)$$

煎き締め操作は水煎き操作に引きつづいて行なわれることが多く、また煎き締め期中のマスクットおよび母液組成の変化が大きいから、上式中の結晶成長係数 k_j



4時40分
 (水煎き開始)
 結晶積分率 $\phi_v = 0.507$
 平均粒子径 $d = 462 [\mu]$

4時48分
 (水煎き終了)
 $\phi_v = 0.441$
 $d = 460 [\mu]$

水煎きの開始時に比べて終了時の偽晶含有量は著しく少なくなっている。

写真 5-2. 水煎きによる偽晶の消滅

は煎き締め進行とともに変動し、本節 (iii) 項で求めた定常値とは異った値を持つ。しかし、この k_j の時間的な変化を追跡することは極めて困難であるから、ここでは簡単のため煎き締めの開始時と終了時で測定した結晶粒径を用いて煎き締めの期間中の平均的 k_j の値を使用する。

$$k_j = \frac{d^{**} - d^*}{t} = \frac{(0.460 - 0.443) \times 10^{-3}}{22/60} \\ = 4.64 \times 10^{-5} \quad [m/hr] \quad (5-1.10)$$

ゆえにカタサ α は (4-3.33) 式によって

$$\alpha = 6.3 \left\{ 1 + \frac{2.73 \times 14.43 \left(1 + \frac{4.64 \times 10^{-5}}{443 \times 10^{-4}} t \right)^3}{32.8 - \frac{(653 - 0.6 \times 135 - 0.4 \times 53) \times 2.5}{(6183 - 30.8)} t - 1.77 \times 14.43 \times \left(1 + \frac{4.6 \times 10^{-5}}{443 \times 10^{-4}} t \right)^3} \right\} \\ = 6.3 \left\{ 1 + \frac{39.4 (1 + 0.1047t)^3}{32.8 - 2.35t - 25.5 (1 + 0.1047t)^3} \right\} \quad (5-1.11)$$

これが煎き締め期におけるカタサの理論式である。これを用いて開始時および終了時のカタサ α^* , α^{**} を計算すると

$$\alpha^* = 40.3 \quad (\text{理論値})$$

$$\alpha^{**} = 88.5 \quad (\text{理論値})$$

また、(5-1.11) 式によって求めたカタサの変化を図 5-1.16 に示した。以上の結果により、煎き締め操作にもとづくカタサの上昇は、充分の精度をもって理論式 (4-3.33) 式で表わすことができることが明らかになった。

(Vi) 結晶成長速度を含む定常関係式

マスクットがある一定の温度と過飽和度に保たれているとき、結晶成長速度 j_{dw} と 2 つの操作量、冷却水流量 W_{c1} および注液速度 W_c または W_m 、との間には次の定常的関係式が成立することを前章で導いた。

$$(\text{結晶期}) : \frac{(\theta_{c2} - \theta_{c1}) C_1}{k_{s1} - C_1 \theta_{c2}} W_{c1} - W_c = \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} \cdot j_{dw} \quad (4-2.14)''$$

$$(\text{育晶期}) : \frac{(\theta_{c2} + \theta_{c1}) C_1}{k_{s1} - C_1 \theta_{c2}} W_{c1} - \frac{C_{m2} - C_{m1}}{C_{m2}} W_m = \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} \cdot j_{dw} \quad (4-3.14)''$$

これらの関係式の意味するところは、すでに 4-4.1 項で説明した。

筆者の行った実験結果を表 5-1.8 および図 5-1.17 に示した。検証已

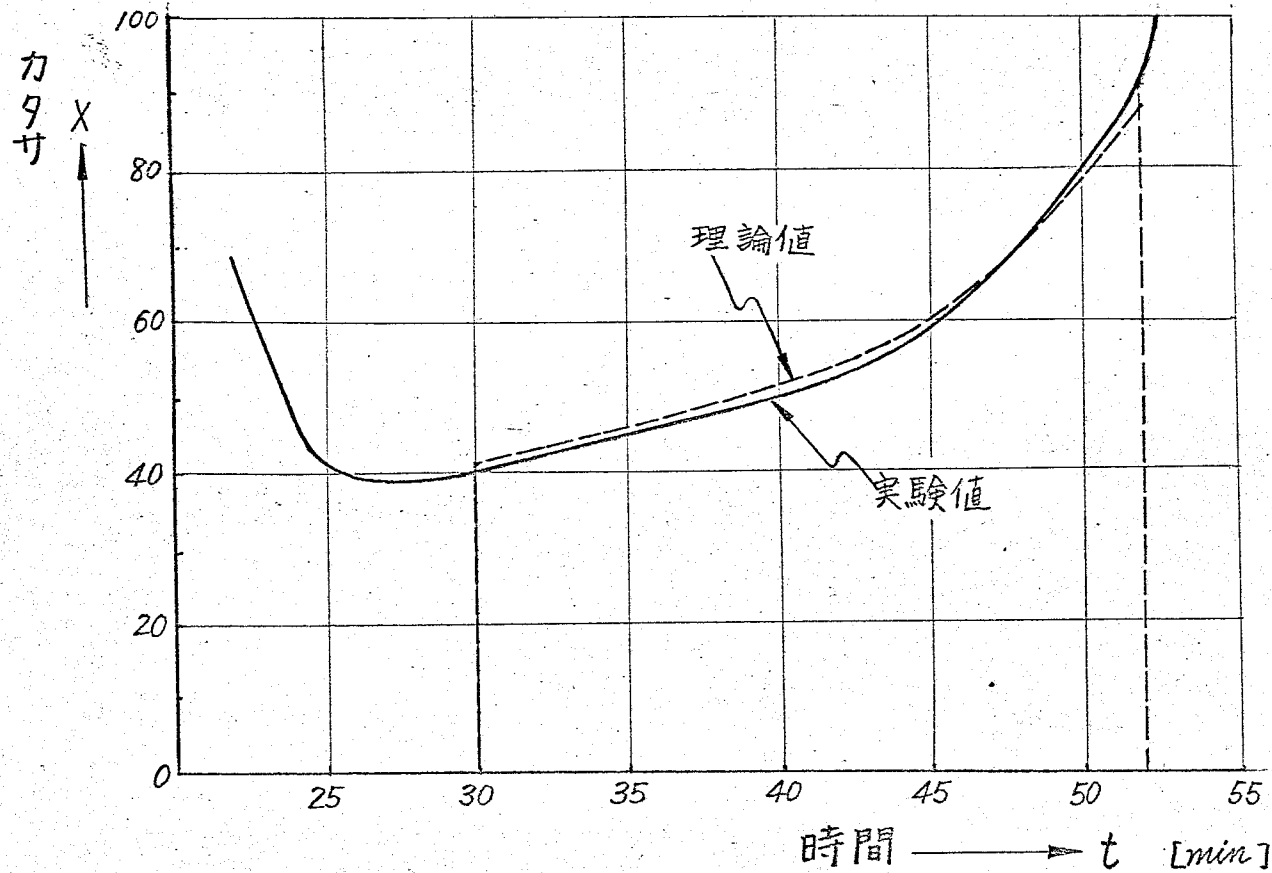


図 5-1-16 煎き締め操作中のカタサの変化

表5-1.8 定常関係式(4-2.14)(4-3.14)の実験値

時刻 t[分]	冷却水量 W_{c1} [kg/h]	冷却水 出口温度 θ_{c2} [°C]	温水注入 速度 W_c [kg/h]	リカ注入 速度 W_m [kg/h]	結晶成長 速度 j_{dr} [kg/h]	左 辺		右 辺
						(4-2.14)式	(4-3.14)式	
70	194	44	3.9	—	42.0	3.96		3.90
80	194	45	3.5	—	51.4	4.03		3.52
90	198	45	3.6	—	60.7	3.87		3.61
100	200	45	3.6	—	63.0	3.84		3.61
110	188	45.5	3.0	9.5	65.4		3.60	4.50
120	190	46	3.0	6.0	70.0		3.69	3.95
130	200	45	3.0	6.0	74.7		3.49	3.95
140	210	45	—	17.0	79.5		3.62	2.68
150	258	44	—	23.0	84.0		4.42	3.63
160	326	40	—	20.0	88.7		3.80	3.15
170	270	41	—	16.0	93.5		3.02	2.52
180	240	41	—	18.0	98.0		2.23	2.84
190	200	41.5	—	12.0	102.5		1.38	1.89
200	193	41.5	—	13.0	107.5		1.07	2.05
210	193	40	—	12.5	116.5		-0.20	1.97
220	268	36	—	14.0	126.0		-0.37	2.21

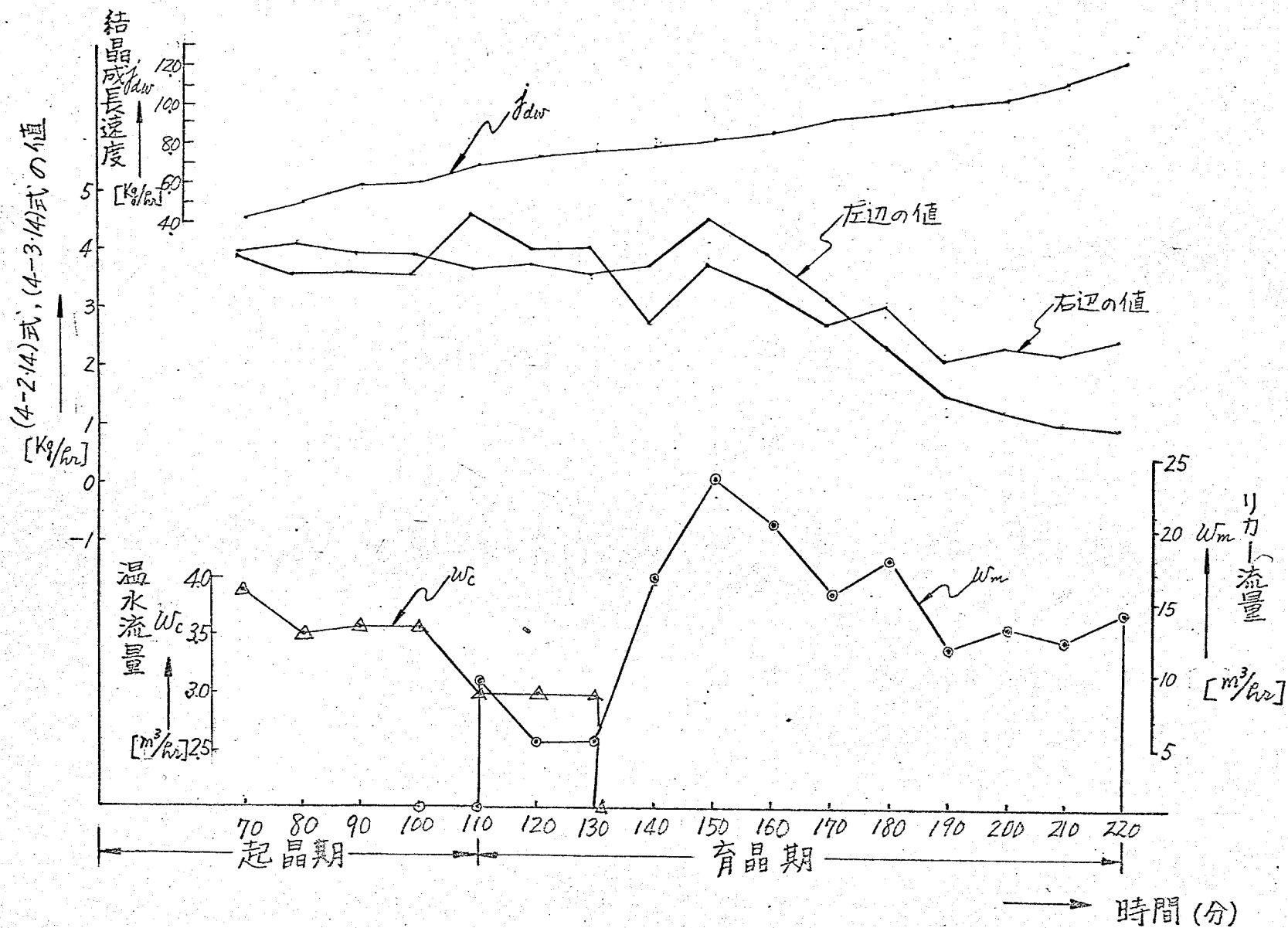


図 5-1.17 定常関係式(4-2.14)", (4-3.14)"式の検証

間を操業開始後70分からとしたのは、それ以前の結晶成長速度の測定がマスクットの不安定さのため困難であったからである。実験値は10分おきの離散値で表わした。図5-1-17に示したように、この実験では起晶期と育晶期との接続部において温水注入と同時に母液注入を併用している。このような操作を行なったときの定常関係式はあきらかに(4-2-14)式と(4-3-14)式を組み合わせた次式で表わすことができる。

$$\frac{(\theta_{c2} - \theta_c) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} W_{c1} - W_c - \frac{C_{m2} - C_{m1}}{C_{m2}} W_m = \frac{1 - C_{m2}}{C_{m2}} \cdot j_{dw} \quad (5-1-12)$$

さて、このようにして得られた実験値を定常関係式の左辺と右辺とに分けて点綴した。この2本の折線は110分および150分の部分の値を除けば、190分ぐらいまではおおよそ等しいことが分った。また起晶期前半における関係式左辺の値は、結晶成長速度 j_{dw} の測定が非常に困難であったため関係式右辺の値と比較できないが、 j_{dw} の傾向から類推するとこの期間においても定常関係式がほぼ成立すると考えて差支えないと思われる。また、110分および150分の部分の左辺と右辺の値が少し偏倚しているが、これは缶内真空度がこの時刻において外乱により変動したからである。なぜなら、この実験では濃度 C_{m2} よりも過飽和度が一定になるように操業したから、もし缶内真空度が一時的に変化すればそれに伴ってマスクットの温度が変化し飽和濃度に影響を与え、したがって一時的に濃度 C_{m2} を変えるように操作したからである。

以上の実験により、結晶成長速度を含む定常関係式(4-2-14)式および(4-3-14)式は育晶期において成立することが確かめられた。

(VII) 液位変動の定常関係式

マスクットの液位変動は定常条件下では温水注入もしくは母液注入の速度の他に結晶成長速度によっても左右される。すなわち

(起晶期)

$$\frac{\Delta l}{l_0} = \left(\frac{\gamma_d}{\gamma_{m2} C_{m2}} - 1 \right) \frac{\Delta V_d}{V_m} \quad (4-2-24)$$

(育晶期)

$$A \frac{dl}{dt} = \frac{C_{m1}}{\gamma_{m2} C_{m2}} W_m - \left(\frac{1}{\gamma_{m2} C_{m2}} - \frac{1}{\gamma_d} \right) j_{dw} \quad (4-3-17)$$

または

$$\Delta l = V_m^* + \frac{C_{m1}}{\gamma_{m2} C_{m2}} \int_{t^*}^t W_m dt - \left(\frac{1}{\gamma_{m2} C_{m2}} - \frac{1}{\gamma_d} \right) (V_d - V_d^*) \quad (4-3-25)$$

これらの関係式の意義と重要性はすでに4-4・1 (iii) で説明した。そこで、起晶期の液位変動は育晶期のそれに比べて小さく、また結晶成長速度が複雑で測定困難であるから、(4-2・24) 式の検証は起晶期の後半のみについて行う。また育晶期の液位変動率はかなり大きく、制御の立場からも重要であるから10分毎の測定値を用いて行う。なお、各時刻における値はその時刻は平均の平均値を用いた。

まず起晶期の関係式(4-2・24) 式を検証するため、起晶期の後半すなわち操業開始後50分～100分の区間を対象とした。 $t = 50$ [分] および $t = 100$ [分] における実験値は、

$$t = 50 \text{ [分]}$$

$$\text{液位: } l_0 = 2.33 \text{ [m]}, \quad \text{結晶容積: } V_d = 2.88 \text{ [m}^3\text{]}$$

$$\text{マスクット容積: } V_m^0 = 29.3 \text{ [m}^3\text{]}$$

$$t = 100 \text{ [分]}$$

$$\text{液位: } l = 2.23 \text{ [m]}, \quad \text{結晶容積: } V_d = 5.45 \text{ [m}^3\text{]}$$

$$\therefore \Delta l = 0.10 \text{ [m]}$$

$$\Delta V_d = 2.57 \text{ [m}^3\text{]}$$

$$\text{結晶粒子の比重量: } \gamma_d = 1.555 \times 10^3 \text{ [kg/m}^3\text{]}$$

$$\text{母液(蔗糖液)の比重量: } \gamma_{m2} = 1.356 \times 10^3 \text{ [kg/m}^3\text{]} \quad (\text{平均})$$

$$\text{母液(蔗糖液)の濃度: } C_{m2} = 0.767 \quad (\text{平均})$$

これらの実験値を(4-2・24) 式の両辺に代入し、比較すると

$$(\text{左辺}) = \frac{\Delta l}{l_0} = \frac{0.10}{2.33} = 4.29 \times 10^{-2}$$

$$(\text{右辺}) = \left(\frac{1.555 \times 10^3}{1.356 \times 10^3 \times 0.767} - 1 \right) \times \frac{2.57}{29.3} = 4.32 \times 10^{-2}$$

このように起晶期後半についての液位変動は(4-2・24) 式で充分に表わせることが分かった。なお、この期間の液位変動は図5-1・9②で見られるように、ほとんど直線的に低下を示している。

つぎに育晶期における液位変動を(4-3・17) 式を用いて検証する。検証区間は $t = 140$ [分] から 220 [分] までとした。この区間内では結晶粒子はかなり安定して成長しており、缶外からの注液は母液だけであるから(4-3・17) 式を用いるのに適切である。表5-1・9 および図5-1・18 に実験結果および(4-3・17) 式両辺の比較を示した。(4-3・17) 式の左辺の値

表5-1.9 液位変動の計算

[min]	[m ²]	[kg/hr]	①	[kg/hr]		②	①-②
t	A _L	W _m	$\frac{C_{m1}}{C_{m2}} \cdot W_{m1}$	ρ_{sw}	$\left(\frac{H}{C_{m2}} - 1\right) \rho_{sw}$	$A \cdot \frac{dl}{dt}$	
140	18.3	23.64 × 10 ³	15.48	7.95 × 10 ³	2.545	11.7	12.93
150	20.6	31.98 × 10 ³	20.90	8.40 × 10 ³	2.690	14.1	18.21
160	23.0	27.80 × 10 ³	18.17	8.87 × 10 ³	2.835	13.2	15.33
170	25.0	22.24 × 10 ³	14.55	9.35 × 10 ³	2.990	10.8	11.56
180	26.6	25.02 × 10 ³	16.36	9.80 × 10 ³	3.140	7.5	13.22
190	27.5	16.68 × 10 ³	10.90	10.25 × 10 ³	3.281	6.6	7.62
200	28.8	18.07 × 10 ³	11.80	10.75 × 10 ³	3.440	7.5	8.36
210	30.0	17.38 × 10 ³	11.36	11.65 × 10 ³	3.730	8.1	7.63
220	31.5	14.46 × 10 ³	9.15	12.60 × 10 ³	4.035	4.5	5.11

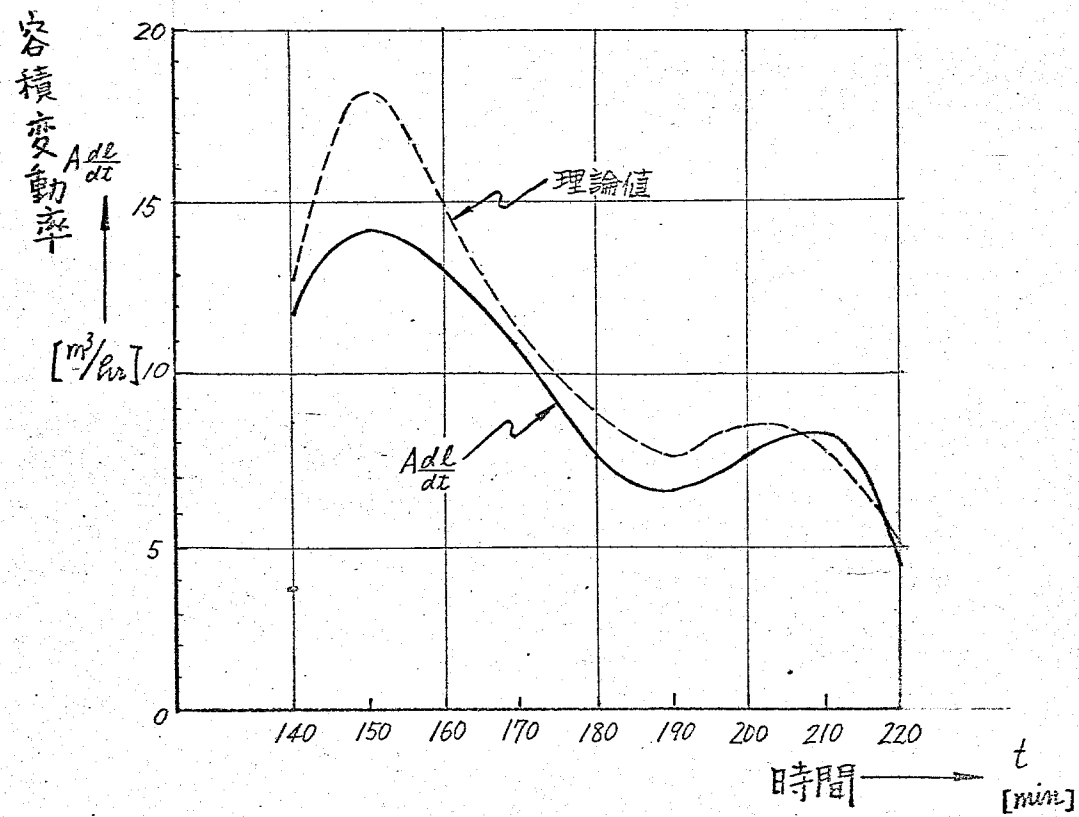


図 5-1-18 液位変動式 (4-3-17) 式の検証

$A \frac{dL}{dt}$ は実測したマスクット容積の増加率をあらわしており、右辺の値は母液注入と結晶成長に伴うマスクット容積の理論的な増加率を表わしていると思われ得るから、結局図 5-1.18 に示した両者の差は理論値と実測値との差異を表わすこととなる。この差異は育晶期後半に近づくにつれて小さくなっている。この理由は、育晶期前半におけるマスクットはかたりの沸騰を呈しており、マスクット中には含まれる気泡の含有量が無視できないほど多いから筆者が用いた差圧式液面計による液位測定値に誤差があったものと思われる。しかし、煎き上げが進むにつれ、マスクットの母液粘度が加速度的に上昇するから激しい沸騰は抑制され、気泡も少なくなり、したがって比較的精度よく液位測定が行われると判断できる。

以上の実験結果と吟味によって、液位変化の定常関係式、(4-2.27)式および(4-3.17)式、は沸騰するマスクット液面の測定方法さえ確実に行われるならば、実用に供し得ることが分かった。

(viii) 加熱速度を含む定常関係式

回分式真空結晶釜の操業と制御の上で、操作量としての加熱速度が与える影響は大きい。この加熱速度は定常操業のためには他の操作量と常にある関係に定められなければならない。すなわち

(結晶期)

$$Q = \left(h_d - \frac{h_{m2}}{C_{m2}} \right) j_{dw} + \frac{(\theta_{c2} - \theta_c) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} \gamma_{m2} W_{c1} - \theta_c W_c \quad (4-2.28)$$

(育晶期)

$$Q = \left(h_d - h'_d - \frac{h_{m2}}{C_{m2}} \right) j_{dw} + \frac{(\theta_{c2} - \theta_c) C_1}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} \gamma_{m2} W_{c1} - \left(\frac{h_{m1}}{C_{m1}} - \frac{h_{m2}}{C_{m2}} \right) C_{m1} W_m$$

(4-3.20)

本項ではこれらの定常関係式の適用できる範囲を含めて実験的に検証する。

まず起晶期の関係式は起晶期全般を通じて成立すると見られるが、すでに述べたように結晶成長速度 j_{dw} の測定が種入れ直後のマスクットについて行おうとすることが困難であったので、ここでは起晶期後半だけについて実験を行った。表 5-1.10 および図 5-1.19 がその結果である。ただし、時刻 $t = 50, 60$ [分] における j_{dw} の値は $t = 70 \sim 100$ における j_{dw} の値を用いて外挿したものである。

また加熱速度 Q は、(4-2.29)式

$$Q = W_0 (h_0 - 0.6 C_1 \theta_0 - 0.4 C_1 \theta_{m2}) \quad (4-2.29)$$

表 5-1-10 起晶期における加熱速度の計算値と実測値

t	冷却水量 W_c [kg/hr]	① $\frac{(\theta_c - \theta_{c1}) C_1 \gamma}{h_{s1} - C_1 \theta_{c2}} \frac{dL}{dt}$	j_{dW} [kg/hr]	② $(\frac{h_{m2}}{C_{m2}}) j_{dW}$	W_c [kg/hr]	③ $\theta_c \cdot W_c$	①+②-③ (4-228)式 右辺の値	Q [Kcal/hr]
50	195×10^3	2.83×10^6	(1.40×10^3)	-0.041×10^6	4.68×10^3	0.243×10^6	2.546×10^6	2.87×10^6
60	195×10^3	2.83×10^6	(2.80×10^3)	-0.084×10^6	4.08×10^3	0.212×10^6	2.534×10^6	2.92×10^6
70	195×10^3	3.02×10^6	4.20×10^3	-0.125×10^6	2.58×10^3	0.134×10^6	2.761×10^6	2.92×10^6
80	195×10^3	3.22×10^6	5.14×10^3	-0.153×10^6	2.28×10^3	0.119×10^6	2.948×10^6	3.08×10^6
90	198×10^3	3.27×10^6	6.07×10^3	-0.181×10^6	3.6×10^3	0.187×10^6	2.902×10^6	2.92×10^6
100	200×10^3	3.40×10^6	6.30×10^3	-0.188×10^6	2.4×10^3	0.125×10^6	3.087×10^6	3.14×10^6

(物性値)

結晶粒子: $h_d = 17.1$ [Kcal/Kg]
のエンタルピー

結晶粒子: $h_{m2} = 36.0$ [Kcal/Kg]
のエンタルピー

結晶粒子: $h_{s1} = 618$ [Kcal/Kg]
のエンタルピー

結晶粒子: $C_{m2} = 0.767$ [-]
のエンタルピー

結晶粒子: $\gamma_{m2} = 587.0$ [Kcal/Kg]
のエンタルピー

結晶粒子: $\theta_{c1} = 28.5$ [°C]
のエンタルピー

結晶粒子: $\theta_c = 52.0$ [°C]
のエンタルピー

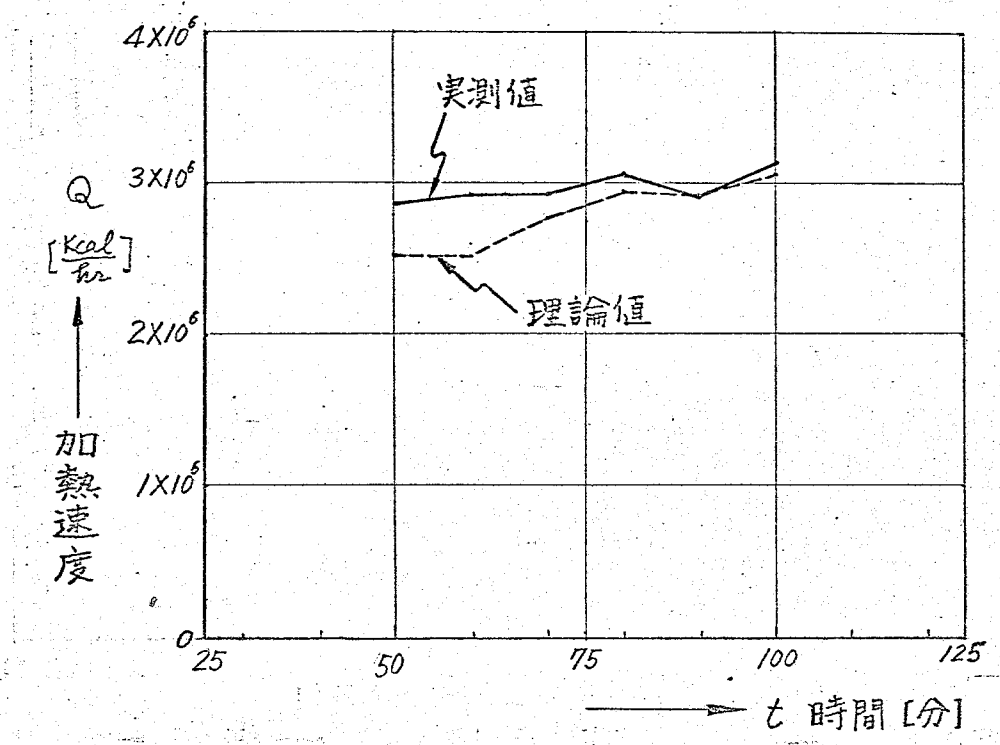


図 5-1-19 起晶期における加熱速度の理論値と実測値の比較

を用いた。

つぎに育晶期について行なった実験結果を表 5-1.11 および図 5-1.20 に示す。ただし、育晶期開始直後の 10 分間はマスクの状態が充分安定しはかったので省いた。また加熱速度 Q の計算は、起晶期と同様に (4-2.29) 式によった。

以上の結果を通覧すると、加熱速度 Q の理論値と実測値がかなり一致することが明らかになった。しかし育晶期後半の一部 ($t = 210 \sim 220$) において理論値が実測値を下回る現象が見られる。これは、育晶期後期になるとマスクのカタサが急激に増大し、流動性が低下する結果、マスクに缶内の位置的な偏り(むら)が生じて測定点における値がマスク全体の値を代表しはかたために起った現象であろうと思われる。このような現象は (4-3.20) 式を誘導する際にすでに指摘したところで、この理論式の適用限界を示すものである。

またつぎに、理論値が実測値より常に低い値を示す原因が缶体から外気への熱放散によるものかどうかを検討する。結晶缶本体から外気への放熱速度は実測が困難であったので次の計算によって求めた。

(保温材) 珪藻土使用, 厚さ = 0.11 [m], 表面は木板張り,

伝熱係数 = 0.08 [kcal/m, hr, °C]

(放熱面積) 側面積 = 63 [m²], 上下底面積 = 13 [m²] 計 76 [m²]

(総括伝熱係数)

保温材表面から外気への熱伝達率 = 5 [kcal/m²·hr·°C] とすると⁽⁹⁾

総括伝熱係数 = $(\frac{1}{5} + \frac{0.11}{0.08})^{-1} = 0.63$ [kcal/m²·hr·°C]

(温度差)

外気温度は作業場内温度 (= 30°C) とすると、温度差 = 52 - 30 = 22 [°C]
ゆえに外気への放熱速度 Q' は

$$Q' = 76 \times 0.63 \times 22 = 1.05 \times 10^3 \text{ [kcal/hr]}$$

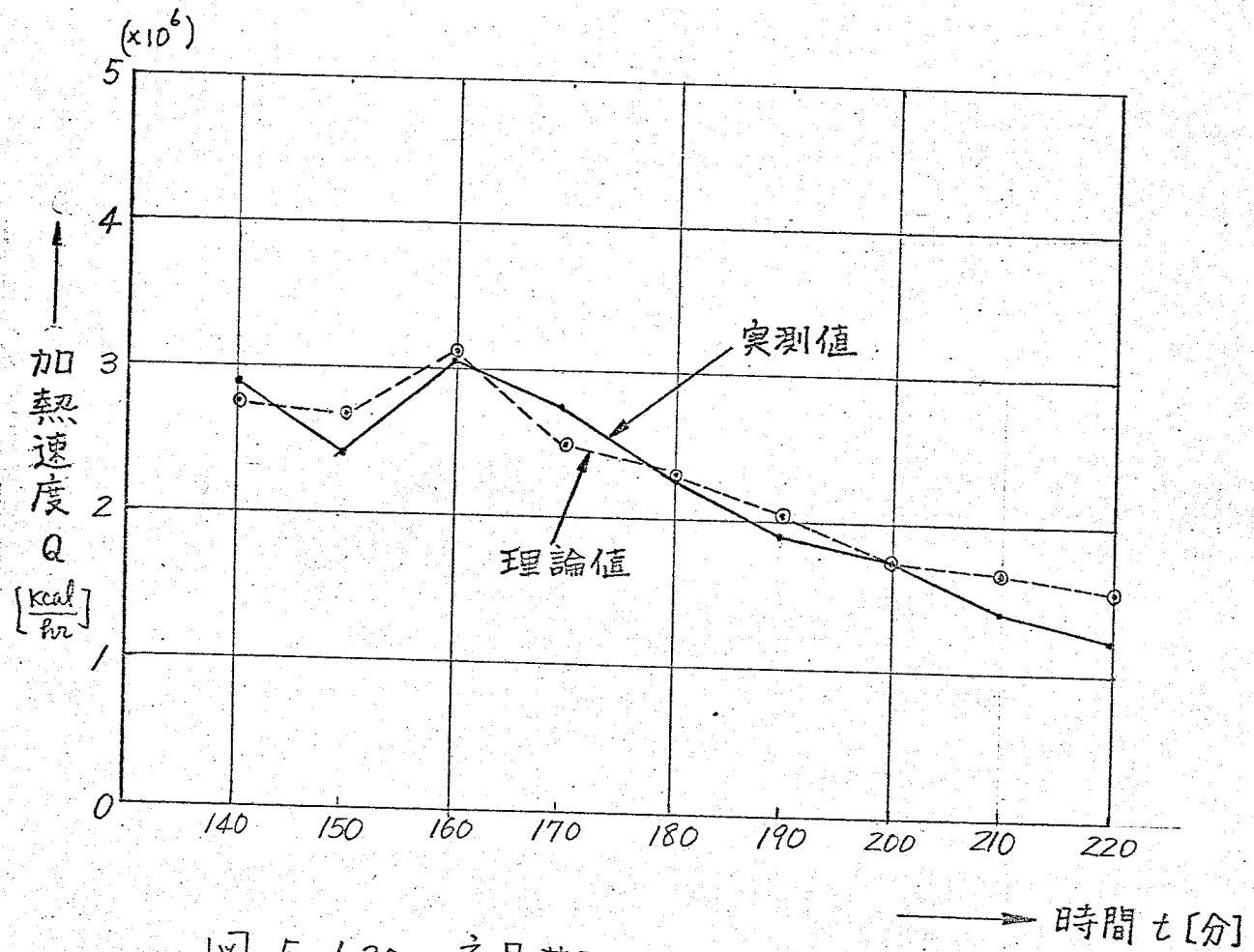
この値は表 5-1.10, 11 に示した加熱速度の $\frac{1}{1,000}$ 以下である。したがって外気への熱損失が理論値と実測値との差異をもたらす支配的な原因ではないと考えられる。

筆者の推察によると、その原因は ① 混合凝縮器で凝縮されずに真空ポンプへ吸入された蒸気を考慮しはかたこと、② 混合凝縮器のエジェクター効果を考慮しはかたこと、③ その他各種の測定誤差、以上の不可避要因が集積されたからであろうと思われる。

表 5-1-11 育晶期における加熱速度の計算値と実測値

t	W_{c1} [kg/hr]	① $\frac{(\theta_{c2}-\theta_{c1})C_{p1}}{h_{s1}-C_p\theta_{c2}} W_{c1}$	j_{dwr} [kg/hr]	② $(h_{d1}-h_{d2})\frac{h_{m2}}{C_{m2}} j_{dwr}$	W_m [kg/hr]	③ $\frac{h_{m2}}{C_{m2}} \frac{h_{m1}}{C_{m1}} C_{m1} W_m$	①+②-③	Q [Kcal/hr]
140	210×10^3	3.550×10^6	7.95×10^3	0.214×10^6	23.63×10^3	0.414×10^6	2.92	2.78×10^6
150	258×10^3	4.089×10^6	8.40×10^3	0.290×10^6	31.98×10^3	0.438×10^6	2.44	2.75×10^6
160	326×10^3	3.808×10^6	8.87×10^3	0.252×10^6	27.80×10^3	0.462×10^6	3.09	3.12×10^6
170	270×10^3	3.439×10^6	9.35×10^3	0.202×10^6	22.24×10^3	0.487×10^6	2.75	2.64×10^6
180	240×10^3	3.057×10^6	9.80×10^3	0.227×10^6	25.02×10^3	0.511×10^6	2.32	2.39×10^6
190	200×10^3	2.642×10^6	10.25×10^3	0.151×10^6	16.68×10^3	0.534×10^6	1.96	2.01×10^6
200	193×10^3	2.549×10^6	10.75×10^3	0.164×10^6	18.07×10^3	0.560×10^6	1.83	1.83×10^6
210	193×10^3	2.254×10^6	11.65×10^3	0.158×10^6	17.38×10^3	0.607×10^6	1.49	1.79×10^6
220	268×10^3	2.029×10^6	12.60×10^3	0.177×10^6	19.46×10^3	0.656×10^6	1.19	1.59×10^6

(物性値は表 5-1-10 と同じ) $h_{m1} = 4.1$, $C_{m1} = 0.68$, $h_{d1} = 22.2$



☒ 5-1.20 育晶期における加熱速度の理論値と実測値の比較

5-1.3 動特性実験

本項は過飽和度(ε)およびカタサ(χ)についての動特性実験とその結果について述べたものである。過飽和度についての実験は起晶期と育晶期において行ない、それぞれ筆者が前章で得た解析結果、(4-2.34)式および(4-3.44)式を用いて理論値と実験値との比較・吟味を行なった。カタサの実験は実際に制御される育晶期について行ない、過飽和度と同様の方法で、(4-3.54)式を用いて検証を行なった。これらの実験によって筆者の求めた動特性の理論式が実験とかなりよい一致を示すことが明らかになった。なお、操作全期間を通じての重要な制御量、すなわち缶内真空度および母液の沸騰温度の動特性実験は、この実験プラント実験装置によって遂行することが困難であったため、次節に示す沸騰プロセスのモデル実験の項で取り上げた。

(i) 過飽和度の動特性実験

前章で筆者が求めた過飽和度εの動特性式は、

$$\text{(起晶期)} \quad \Delta \varepsilon = \frac{1}{T_{wo} S} \cdot \Delta W_o - \frac{1}{T_{wc} S} \Delta W_c - \frac{K_{ps}}{1 + \tau S} \Delta p_s \quad (4-2.34)$$

$$\text{(育晶期)} \quad \Delta \varepsilon = \frac{1}{T_{wo} S} \cdot \Delta W_o - \frac{1}{T_{wm} S} \Delta W_m - \frac{K_{ps}}{1 + \tau S} \Delta p_s \quad (4-3.44)$$

ただし、 W_o : 加熱蒸気速度 [kg/hr], 温水注入速度 [kg/hr], W_m : 母液注入速度 [kg/hr], p_s : 缶内真空度 [kg/m², または mmHg]

$$\text{また, } T_{wo} = (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \left\{ \bar{\gamma}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) k_{om} \right\} \bar{C}_{m2} (1 - \bar{C}_{m2}) \cdot \bar{\gamma}_{m2} / (1 - \bar{C}_{m2}) k_g$$

$$T_{wc} = (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \left\{ \bar{\gamma}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) k_{om} \right\} \bar{C}_{m2} (1 - \bar{C}_{m2})^2 / (1 - \bar{C}_{m2}) (1 - \frac{\theta_c}{\bar{\gamma}_{m2}})$$

$$T_{wm} = (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \left\{ \bar{\gamma}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) k_{om} \right\} \bar{C}_{m2} (1 - \bar{C}_{m2})^2 / (1 - \bar{C}_{m2}) (1 - C_m - \frac{h_{m1}}{\bar{\gamma}_{m2}})$$

$$K_{ps} = k_{co} k_{op} \bar{C}_{m2} / \bar{C}_{m2}^2 (1 - C_m)$$

$$\tau: \left\{ \begin{array}{l} \tau_1 = C_m / \alpha = (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \bar{\gamma}_{m2} \cdot \bar{h}_{m2} \\ \tau_2 = C_m / \bar{Q} \beta e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2} - \bar{\theta}_{m2})} = (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \bar{\gamma}_{m2} \cdot \bar{h}_{m2} / \bar{Q} \beta e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2} - \bar{\theta}_{m2})} \end{array} \right.$$

ここでτの値は表4-1.2に示したように、入力Δp_sの正負によってそれぞれτ₁, τ₂と使い分けべき値である。

これら2つの動特性の式は右辺第2項のみが異なっている。すなわち、入力項は起晶期においては温水注入速度W_cであり、育晶期においては母液注入速度W_mである。したがって、ここでは育晶期における加熱蒸気速度W_oと缶内真空度p_sに対する動特性実験は起晶期のそれと一括して示した。

(加熱蒸気速度 ΔW_0 に対する動特性)

まず、加熱蒸気速度に対する過飽和度動特性の実験結果を示す。(なお第8章において議論するが、この加熱蒸気速度は過飽和度制御の主要な操作量である。) 筆者が実験を行なったカランドリア形真空結晶缶の場合だけに限らず、一般に蒸気加熱を行なうプラントの蒸気流量は、蒸気源系統そのものにおける流量変動のほかは伝熱部の複雑な伝熱機構によって蒸気の流量にリップル状変動を伴うことが多い。また(4-2.34)、(4-3.44)式右辺第一項の加熱蒸気速度に関する動特性項はすでに前章で述べたように、そのまゝ比較的外乱のすくなく濃縮期後期すなわち種入り直前の時期にも成立するはずであるから、ここでは実験の精度を期するため敢えて種入り直前の状態を延長させて実験を行なった。

実験開始時刻は操業開始後18分で、加熱蒸気速度のステップ入力に対する過飽和度の過渡応答を測定した時間は約20分間であった。実験データを図5-1.21に示す、図で明らかのように、過飽和度の過渡応答は積分性を示している。そこで積分性応答の積分ゲインの逆数 T_{wo} を(4-2.34)式または(4-3.44)式、実験条件および物性値などを用いて理論的に計算し、この理論値と実験値を比較し検証する。

(4-2.34)式または(4-3.44)式より

$$\Delta Z = \frac{1}{T_{wo} S} \Delta W_0 \quad (5-1.13)$$

ただし T_{wo} は

$$T_{wo} = (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \left\{ \bar{\rho}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) \rho_{sm} \right\} \frac{\bar{C}_{m2} (1 - \bar{C}_{m2})^2 \gamma_{m2}}{(1 - \bar{C}_{m2}) \cdot \rho_{lg}}$$
 実験条件および物性値から求めた数値は以下の通りである。

マスクット全容積: $\bar{V}_m = 15.0$ [m³], 結晶容積: $\bar{V}_d = 0$ [m³], 溶液濃度: $\bar{C}_{m2} = 0.714$, 溶液飽和濃度: $\bar{C}_{m2}^* = 0.724$, 溶液比重量: $\bar{\rho}_{m2} = 1.358 \times 10^3$ [kg/m³], 濃度比重量換算係数: $\rho_{sm} = 0.633 \times 10^3$ [kg/m³], 加熱蒸気係数: $\rho_{lg} = 608$ [kcal/kg], 溶液蒸発潜熱: $\gamma_{m2} = 587$ [kcal/kg],

これらの数値を用いて計算した T_{wo} は

$$\begin{aligned} T_{wo} \Big|_{\text{理論}} &= \frac{15.0 \{ 1.358 - (1 - 0.714) \times 0.633 \} \times 10^3 \times 0.724 \times (1 - 0.714)^2 \times 587}{(1 - 0.724) \times 608} \\ &= 3.66 \times 10^3 \text{ [kg]} \end{aligned} \quad (5-1.14)$$

(5-1.13)式を時間関数で表現すれば

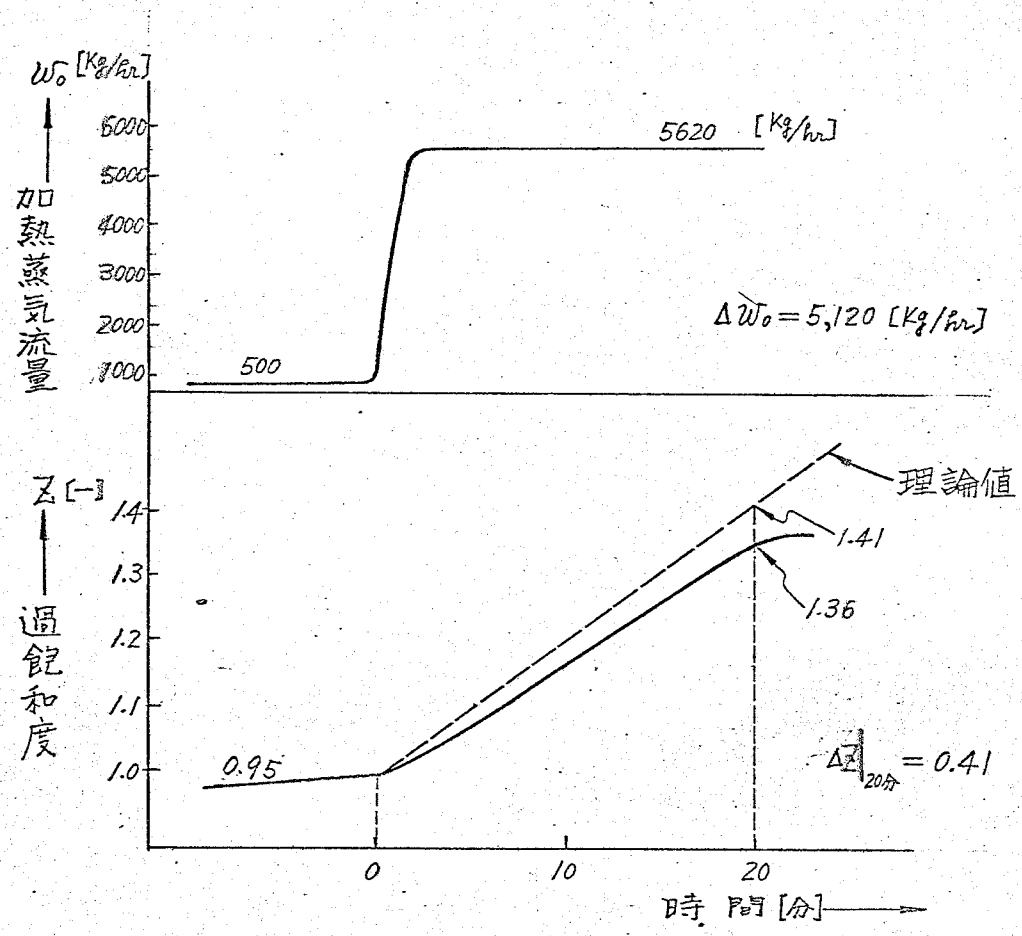


図 5-1-21 加熱蒸気流量に対する過飽和度のステップ応答

$$\Delta z = \frac{1}{T_{wo}} \int_0^t \Delta W_o dt$$

とわかるから、実験で行なった入力 $\Delta W_o = 5,120$ [kg/h] に対する理論的経過飽和度変化 Δz は、積分定数 (5-1.14) 式を用いると図 5-1.21 の点線のようになる。また、過渡応答経端 $t = 20$ (分) における値は

$$\begin{aligned} \Delta z \Big|_{\text{理論}} &= \frac{1}{3.66 \times 10^3} \times 5,120 \times \frac{20}{60} \\ &= 0.46 \end{aligned}$$

この理論値は図 5-1.21 に示した実験値

$$\Delta z \Big|_{\text{実験}} = 0.41$$

とほぼ一致を示している。ゆえにこの実験によって、加熱蒸気速度に対する過飽和度の動特性式, (5-1.13) 式は、充分な精度をもつて成立することが明らかにできた。

(温水注入速度 W_c に対する動特性)

温水の注入速度 W_c に対する過飽和度 z の動特性は、(4-2.34) 式より

$$\Delta z = - \frac{1}{T_{wcS}} \Delta W_c \quad (5-1.15)$$

ただし、積分係数 T_{wc} は

$$T_{wc} = (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \left\{ \bar{\rho}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) \rho_{om} \right\} \frac{\bar{C}_{m2} (1 - \bar{C}_{m2})^2}{(1 - \bar{C}_{m2})(1 - \frac{\theta_c}{\gamma_{m2}})}$$

このような積分特性は前項と同じ方法によって検証することができる。

筆者の行なった実験結果を図 5-1.22 に示す。この実験は起晶期後期において行ない、操業開始後 71 分から開始し、過渡応答を測定した時間は約 20 分間であった。図に示した過渡応答は明らかに積分性を示しているから、この過渡応答の値が (5-1.15) 式にもとづく筆者の理論値ほどの程度一致するかを以下に検証する。

実験条件および物性値から求めた数値は次の通りである。マスキット全容積: $\bar{V}_m = 14.0$ [m³], 結晶容積: $\bar{V}_d = 3.8$ [m³], 溶液濃度: $\bar{C}_{m2} = 0.775$, 溶液飽和濃度: $\bar{C}_{m2}^o = 0.726$, 溶液比重量: $\bar{\rho}_{m2} = 1.398 \times 10^3$ [kg/m³], 濃度比重量換算係数: $\rho_{om} = 0.656 \times 10^3$ [kg/m³], 溶液蒸発潜熱: $\gamma_{m2} = 587$ [kcal/kg], 温水温度: $\theta_c = 51$ [°C],
これらの数値を用いて計算した積分時間 T_{wc} は、

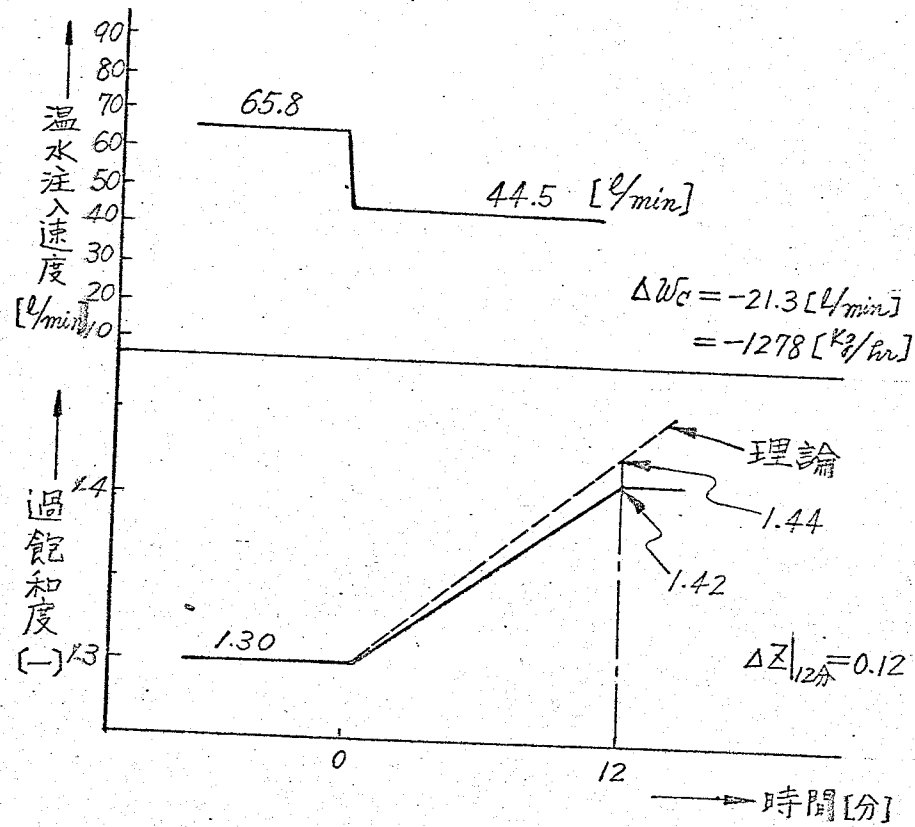


図 5-1.22 温水注入速度に対する過飽和度のステップ応答

$$T_{wc}|_{\text{理論}} = \frac{(14.0-3.8) \{1.398 - (1-0.775) \times 0.656\} \times 10^3 \times 0.726 \times (1-0.775)^2}{(1-0.726) \times (1 - \frac{51}{587})}$$

$$= 1.87 \times 10^3 \text{ [Kg]} \quad (5-1.16)$$

(5-1.15) 式を時間関数で表現すれば

$$\Delta z = - \frac{1}{T_{wc}} \int_0^t \Delta W_c dt$$

となる。そこでこの式を用いて、実験を行なった入力 $\Delta W_c = 1.278 \text{ [kg/hr]}$ に対する理論的過飽和度変化 Δz を示すと図 5-1.22 の点線のようになる。また過渡応答の終端 $t = 12 \text{ [分]}$ における値は、

$$\Delta z|_{\text{理論}} = - \frac{1}{1.87 \times 10^3} \times (-1.278) \times \frac{12}{60} = 0.14$$

この理論値は図 5-1.22 に示した実験値

$$\Delta z|_{\text{実験}} = 0.12$$

と比較して約 10% ほど大きいが、満足できる一致を示している。故にこの実験によって、温水注入速度に対する過飽和度の動特性 (5-1.15) 式は実験規模の回分式真空結晶缶について成立することが検証できた。

(母液注入速度 W_m に対する動特性)

育晶期の母液注入速度 W_m に対する過飽和度 z の動特性は、(4-3.49) 式より

$$\Delta z = - \frac{1}{T_{wm} S} \Delta W_m \quad (5-1.17)$$

ただし、積分係数 T_{wm} は

$$T_{wm} = (\bar{V}_m - \bar{V}_a) \left\{ \bar{\rho}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) \rho_{sm} \right\} \bar{C}_{m2} (1 - \bar{C}_{m2}) / (1 - \bar{C}_{m2}) \cdot (1 - C_{m1} - \frac{\rho_{m1}}{\rho_{m2}})$$

この積分特性は前項までと同じ方法を用いて検証することができる。

筆者の行なった実験結果を図 5-1.23 に示す。この実験は育晶期中期において行ない、過渡応答を測定した時間約 10 分間であった。この図で明らかのように、過飽和度の過渡応答は積分性を示している。以下に、(5-1.17) 式を用いて筆者の理論値を計算し、実験値との照合を行なう。

実験条件および物性値から求めた数値は次の通りである。マスクットの全容積： $\bar{V}_m = 20.3 \text{ [m}^3\text{]}$ ，結晶容積： $\bar{V}_a = 8.04 \text{ [m}^3\text{]}$ ，溶液濃度： $\bar{C}_{m2} = 0.778$ ，溶液飽和濃度： $\bar{C}_{m2}^0 = 0.726$ ，溶液比重： $\bar{\rho}_{m2} = 1.399 \times 10^3$

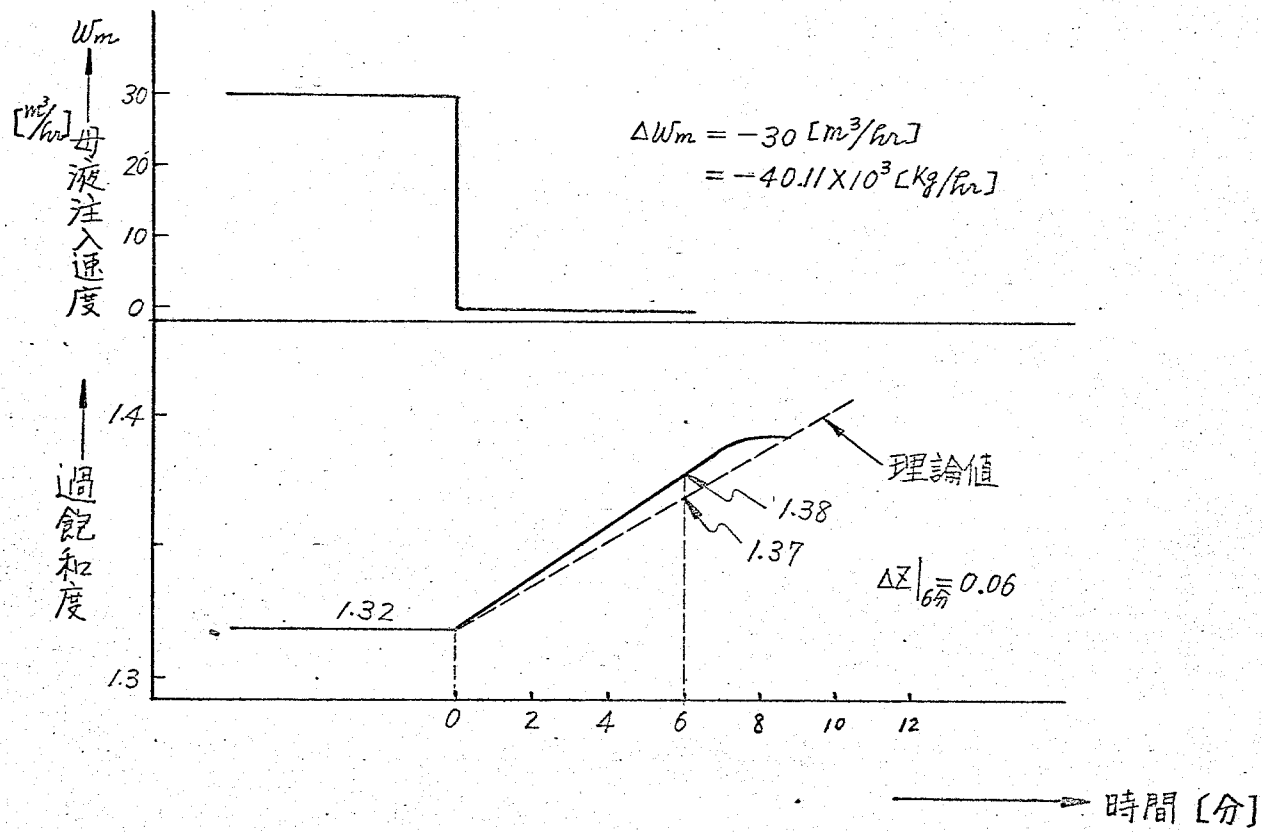


図 5-1-23 母液注入速度に対する過飽和度のステップ応答

[kg/m³], 濃度比重換算係数: $h_{rm} = 0.658$, 溶液蒸発潜熱: $r_{m2} = 587$ [kcal/kg], 母液エンタルピ: $h_{m1} = 41$ [kcal/kg], 母液濃度: $C_{m1} = 0.680$,

これらの数値を用いて計算した積分時間 T_{wm} は,

$$T_{wm} \Big|_{\text{理論}} = \frac{(20.30 - 804) \times \{1.399 - (1 - 0.778) \times 0.658\} \times 10^3 \times 0.726 \times (1 - 0.778)^2}{(1 - 0.726) \times (1 - 0.680 - \frac{41}{587})}$$

$$= 80.3 \times 10^3 \quad [\text{kg}] \quad (5-1.18)$$

(5-1.17) 式を時間関数で表現すれば

$$\Delta Z = - \frac{1}{T_{wm}} \int_0^t \Delta W_m dt$$

となる。そこでこの式にもとづく理論的過渡応答を(5-1.18)式の値をもとにして図5-1.23に点線で示した。また過渡応答の終端値, $t = 6$ [分] における理論的過飽和度変化 ΔZ は, 入力 $\Delta W_m = -40.11 \times 10^3$ [kg/hr] に対して

$$\Delta Z \Big|_{\text{理論}} = \frac{-1}{80.3 \times 10^3} \times (-40.11 \times 10^3) \times \frac{6}{60} = 0.050$$

この理論値は図に示した実験値

$$\Delta Z \Big|_{\text{実験}} = 0.06$$

より少し低く現われている。しかし温水注入の場合とは異なり, 母液注入による過飽和度の変化 ΔZ の絶対値は上記程度の小さい範囲でしか変動しないから, 測定値の読取り誤差を考慮するとこの程度の差異は制御系設計の立場から差支えないものと考えられる。ゆえに, この実験によって母液注入速度に対する過飽和度の動特性, (5-1.17) 式は実規模の回分式真空結晶缶について成立することが実験証できた。

(缶内真空度 p_s に対する動特性)

缶内真空度 p_s に対する過飽和度 Z の動特性は(4-2.34), (4-3.44) 式より

$$\Delta Z = - \frac{K_{ps}}{1 + \tau S} \cdot \Delta p_s \quad (5-1.19)$$

ただし, この実験に関して時定数 τ は表4-1.2に示された式のうち τ_2 , すなわち圧力降下の場合,

$$\tau = \tau_2 = (\bar{V}_m - \bar{V}_d) \bar{\rho}_{m2} \bar{h}_{m2} / \bar{Q} \beta \cdot e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2} - \bar{\theta}_{m2})}$$

を代入して(*) また、ゲイン定数 K_{ps} は

$$k_{ps} = k_{cp} k_{op} \bar{C}_m / \bar{C}_{m2} (1 - \bar{C}_{m2})$$

である。

実験結果を図 5-1.24 に示す。この実験は起晶後期すなわち操業開始後 10.5 分から始め、約 10 分間継続して測定した。この過渡応答の入力 Δp_s は、混合凝縮器の冷却水流量を操作するだけではおぼろぎのおくれが避けられなかった。この実験では加熱蒸気速度も同時に操作して、その結果、ほぼステップ状と見られることのできる入力波形を加えることができた。

実験結果に示した、カタサの過渡応答が 1 次おくれ系であるかどうかを確認するため応答曲線を読みとって片対数グラフにプロットした。図 5-1.25 がそれで、これは明らかに時定数 $\tau = 1.33$ [min] の 1 次おくれ応答であることが分かった。また、ゲイン定数の実験値と筆者が導いた理論値とを比較する。実験条件および物性値は次の通りである。

$\bar{Q} = 3.96 \times 10^6$ [kcal/hr], $\bar{V}_m - \bar{V}_d = 14.3$ [m³], $\bar{\rho}_{m2} = 1.356 \times 10^3$ [kg/m³], $\bar{h}_{m2} = 36.0$ [kcal/kg], $\bar{\theta}_{m2} = 55$ [°C], $\bar{\theta}_{m2} - \bar{\theta}_{m2} = -1.28$ [°C] ます、時定数 τ の理論値は、表 4-1.2 の τ_2 を用いて

$$\tau_2 = \frac{14.3 \times 1.356 \times 10^3 \times 36.0}{3.96 \times 10^6 \times 1.38 \times e^{1.38 \times 1.28}} = 0.0233$$
 [hr]

$$= 1.40$$
 [min]

ただし、ここで β の値 (= 1.38) は実験に供した結晶缶についての平均値である。また、ゲイン定数 K_{ps} の理論値は、

$$K_{ps} = \frac{1.40 \times 10^{-3} \times 0.20 \times 0.778}{(0.726)^2 \times (1 - 0.778)} = 0.0186$$

このように、理論値は 5% 以下の精度で実験値と一致していることが分かった。図 5-1.24 に理論値をあわせて示した。

以上によつて、缶内真空度に対する過飽和度の動特性、(5-1.19) 式、は実験結果と満足する一致を見るということが明らかになった。

(*) 時定数 τ_1 , τ_2 に関する詳しい実験は 5-2 節で扱う。

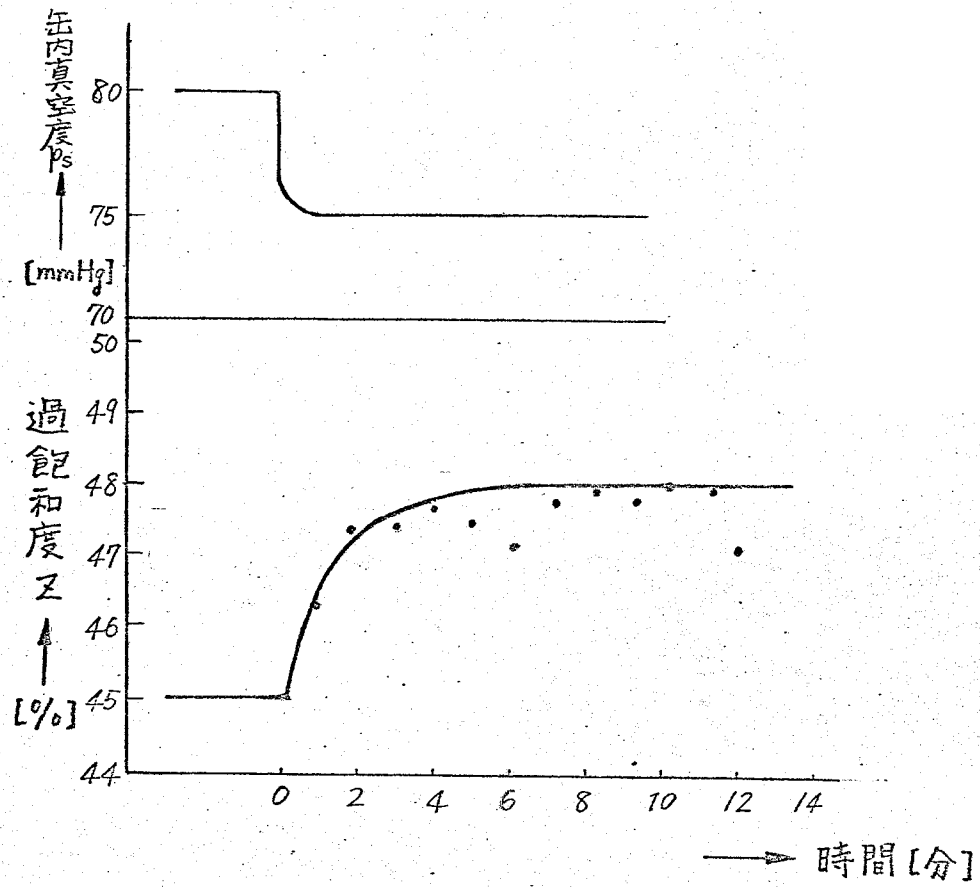
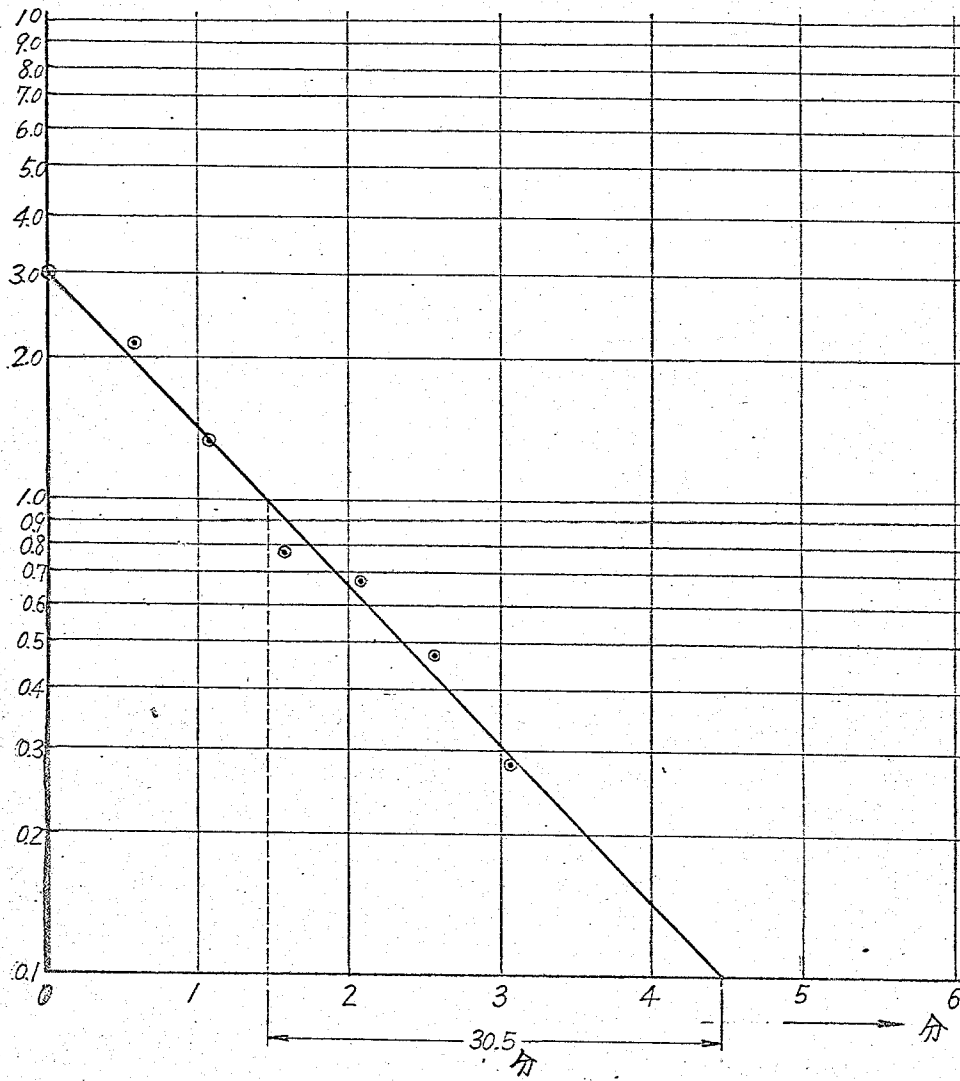


図 5-1.24 室内真空度に対する過飽和度のステップ応答



□ 5-1.25 時定数の決定

(ii) カタサの動特性実験

筆者の誘導したカタサ χ の動特性式はもともと(4-3.53)式に示したように、理論的には1次おくれを積分した伝達関数であらねべきであるが、附録(4-5)で吟味したように、これを(4-3.54)式のように2次積分性と見做すことができる。そこで、ここでは(4-3.54)式を用いて検討する。

$$\Delta\chi = \frac{1}{\tau S^2} \{ K_1 \Delta Q - K_2 \Delta W_m \} \quad (4-3.54)$$

ただし、

$$\left\{ \begin{array}{l} \tau = \frac{F_1}{F_2} \\ K_1 = \frac{k_1 \chi_0}{F_2 (A\bar{l})^2 (1 - k_2 \phi_2)^2} \left\{ A\bar{l} + \frac{\bar{v}_a (F_2 + F_3)}{F_4} \right\} \\ K_2 = \frac{k_1 \chi_0}{F_2 (A\bar{l})^2 (1 - k_2 \phi_2)^2} \left\{ A\bar{l} F_3 + \frac{\bar{v}_a (F_3 F_5 + F_2 F_6)}{F_4} \right\} \end{array} \right.$$

である。ここで定数 $F_1 \sim F_2$ は、(4-3.51), (4-3.52)式に示したように、 F_1 を除きすべて物値定数で定義できる定数である。

上記のカタサの動特性は育晶期について求めたものであり、加熱速度 ΔQ および母液注入速度 ΔW_m に対してそれぞれ2次積分性を有している。

(加熱速度 Q に対する動特性)

育晶期の加熱速度 Q に対するカタサ χ の動特性の式は(4-3.54)式より

$$\Delta\chi = \frac{K_1}{\tau S^2} \Delta Q \quad (5-1.20)$$

この動特性を過渡応答法によって検証する。入力としての加熱速度 ΔQ はステップ状に加えねば正常な方法である。しかし実験中の結晶缶にこの方法をそのまま適用すると、マスクットの缶内循環を著しく悪化させ缶内のマスクットをふたたび定常状態へ回復させることが困難であったので、ここでは以下に述べる別の方法を採用せざるを得なかった。すなわち、筆者は、育晶終了期すなわち煎き締め準備がほとんど整ったマスクットが比較的安定化した時期において、加熱蒸気速度は一定に保つたまま大量の温水注入を行って、カタサを下げ、この操作によってカタサが上昇する余裕をあらかじめ確保した。つぎに温水注入を漸減させてカタサがちょうど定常値に停留するように操作し、このカタサをもって過渡応答前の定常値とした。過渡応答における入力印加方法は、それまでの温水注入だけをステップ状に遮断することにより、一定流量を保つている加熱蒸気が等価的にステップ状

に上昇する原理を応用した。このような方法にもとづく過渡応答実験の結果を図5-1.26に示した。

このカタサ ΔX の応答を図5-1.27の片自乗目盛りへプロットすると、カタサ ΔX は時間の自乗に比例して増大していることが明瞭に示された。これは(5-1.20)式の時間関数、すなわちこの場合

$$\Delta X = \frac{K_1}{2\tau} \Delta Q \cdot t^2$$

の特性と一致しているから、したがってカタサの応答は二次積分性をもっていることが分った。そこでこの実験結果から係数 τ/K_1 を求めると、

$$\frac{\tau}{K_1} = \frac{1.568 \times 10^6}{2 \times 350.4} = 2.23 \times 10^3 \quad [\text{kcal} \cdot \text{hr}]$$

である。

筆者の理論式による τ/K_1 の値は

$$\tau = 1.01 \times \frac{18.1}{20} \times \left(\frac{2.0}{4.5} \right)^2 = 0.18 \quad [\text{hr}]$$

$$K_1 = \frac{2.73 \times 6.3}{5.4 \times 10^5 \times 33^2 \times (1 - 1.77 \times 0.45)^2} \cdot \left[33 + \frac{6 \times 14.9 \times (5.4 + 1.7) \times 10^5}{6.4 \times 10^5} \right]$$

$$= 9.39 \times 10^{-5} \quad [\text{kcal}^{-1}]$$

$$\therefore \frac{\tau}{K_1} = 1.92 \times 10^3 \quad [\text{kcal} \cdot \text{hr}]$$

この理論値は実験値より約15%小さいが、その原因は入力の加え方の他に蒸気流量の外乱にもあると思われる。しかし制御系の設計の目的には筆者の理論式は充分であると考えられる。

(母液注入速度 W_m に対する動特性)

育晶期の母液注入速度 W_m に対するカタサ ΔX の動特性は(4-3.54)式より

$$\Delta X = - \frac{K_2}{\tau \cdot S^2} \Delta W_m \quad (5-1.21)$$

入力 ΔW_m をステップ状に加え、約10分間過渡応答を測定した。図5-1.28に実験結果を示す。

この動特性は前項と同様に、図5-1.29に示すような片自乗目盛りに応答をプロットすることによって、二次積分性であることを確かめることができた。

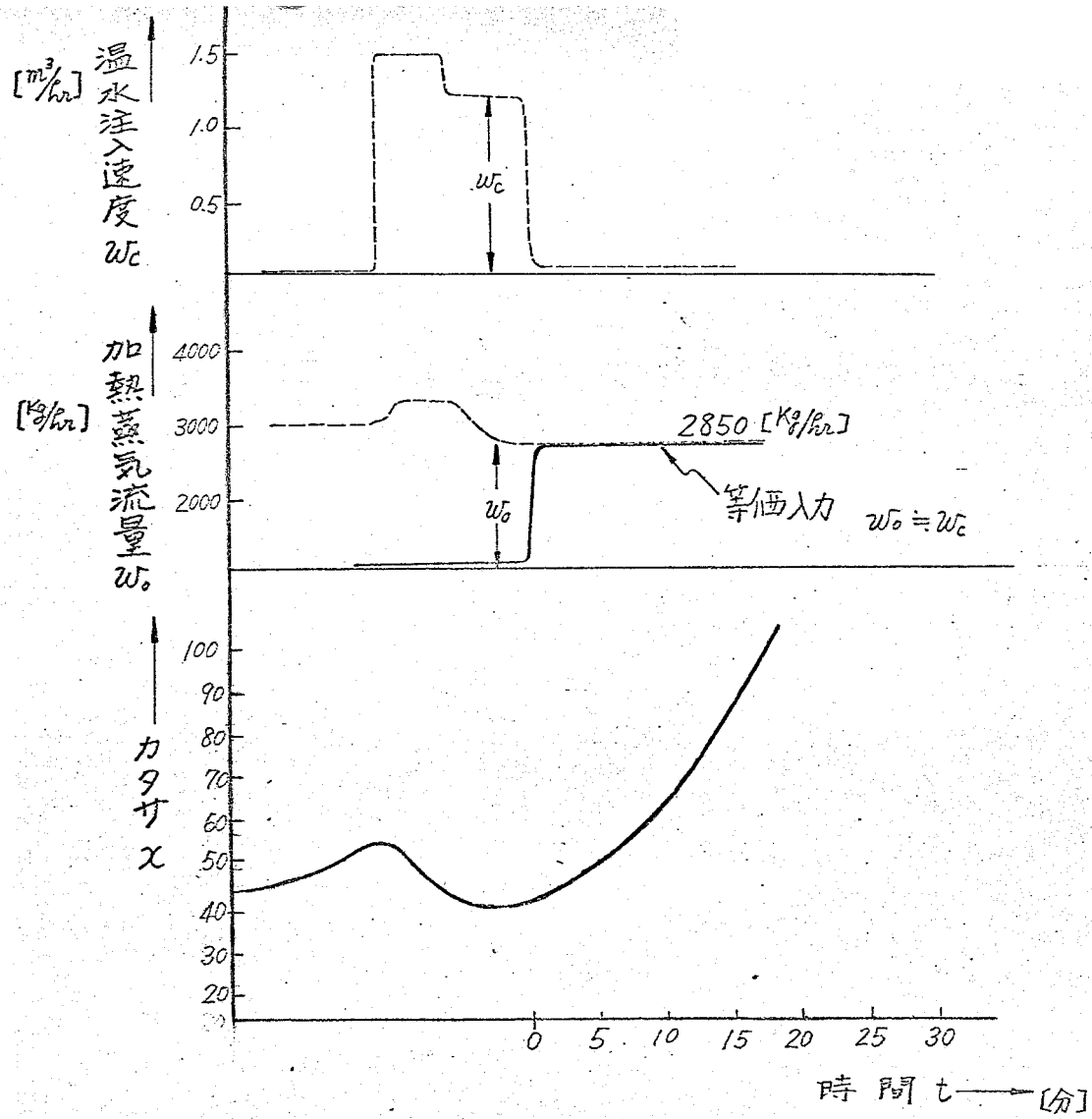


図 5-1-26 加熱速度に対するカタサのステップ応答

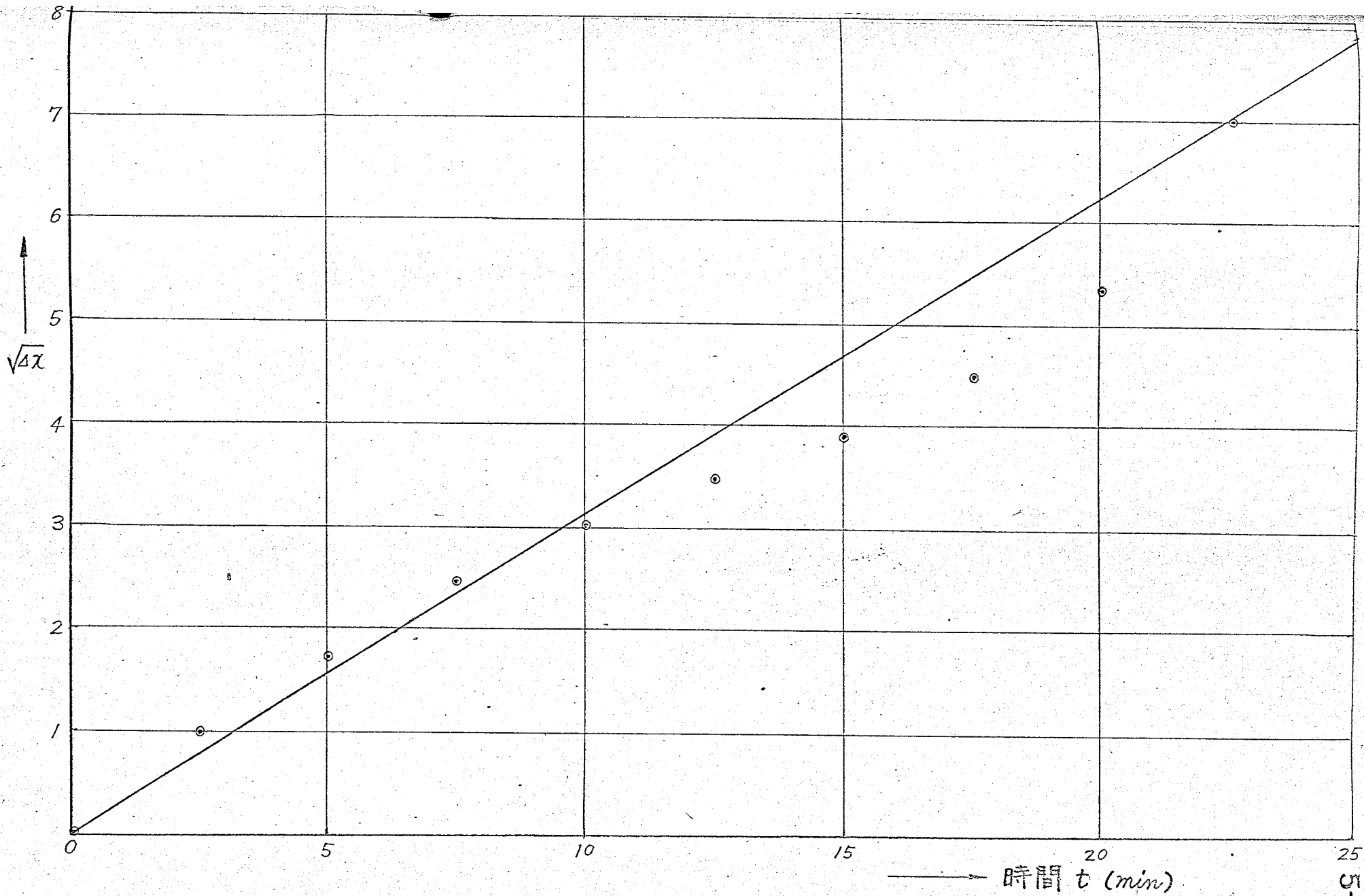


図 5-1.27 カタサのステップ応答

5-72

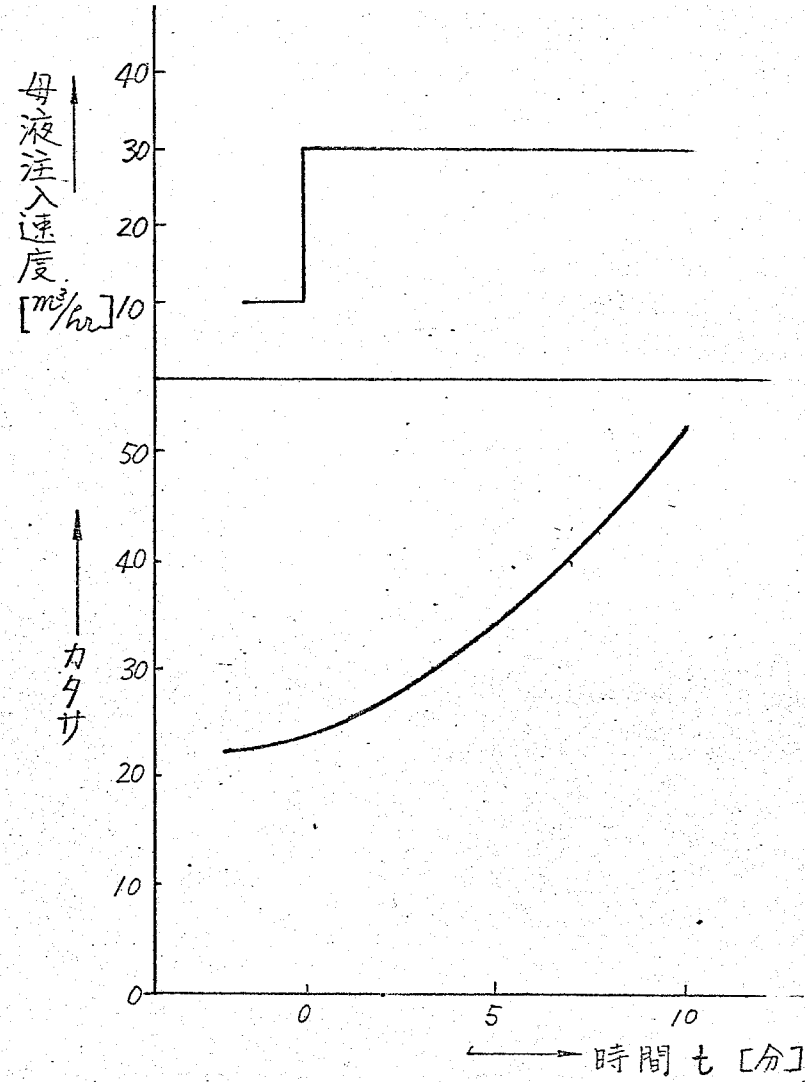


図 5-1-28 母液注入速度に対するカタサのステップ応答

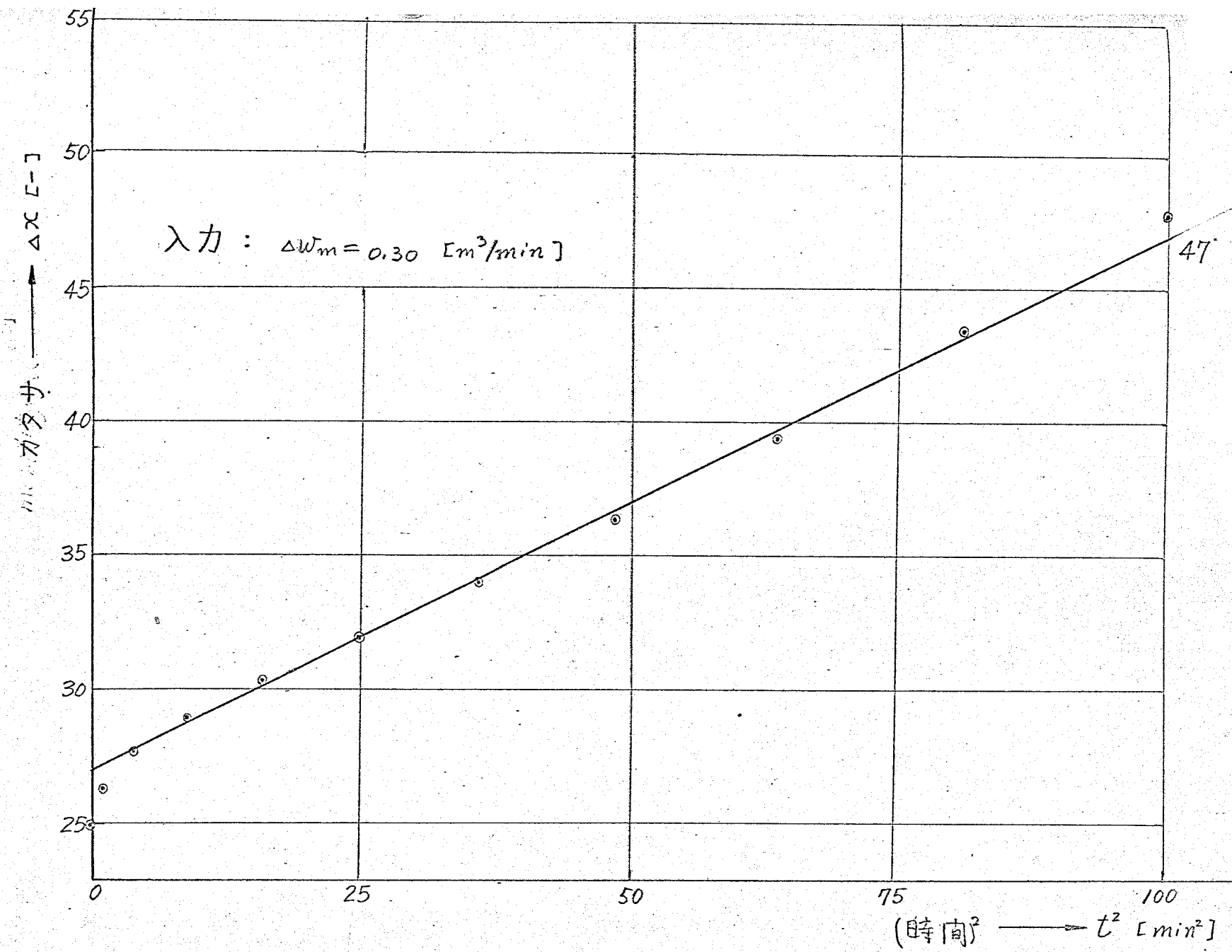


図 5-1.29 | カタサのステップ応答

(5-1.21) 式の時間関数は

$$\Delta X = \frac{-K_2}{2\tau} \Delta W_m \cdot t^2$$

であるから、実験結果から係数 τ/K_2 を求めると

$$\frac{\tau}{K_2} = \frac{40.11 \times 10^3}{2 \times 720} = 27.9 \quad [\text{kg} \cdot \text{hr}]$$

である。一方、筆者のこの理論値は

$$\tau = 1.01 \times \frac{18.1}{20} \times \left(\frac{2.0}{45}\right)^2 = 0.18 \quad [\text{hr}]$$

$$K_2 = \frac{2.73 \times 6.3}{5.4 \times 10^5 \times 20^2 \times (1-1.77 \times 0.4)^2} \left[20 \times 1.5 \times 10^2 + \frac{6 \times 8 \times (1.5 \times 1.7 + 5.4 \times 5.1) \times 10^2}{6.4 \times 10^5} \right]$$

$$= 2.39 \times 10^{-2} \quad [\text{kg}^{-1}]$$

$$\therefore \frac{\tau}{K_2} = 25.36 \quad [\text{kg} \cdot \text{hr}]$$

この理論値は実験値より約10%小さい。この程度の精度があれば制御系設計の目的のためには筆者の理論式は充分であると考えられる。

(本節の結言)

以上のように、実験結果とその理論値との比較吟味によって、第4章で導いた回分式真空結晶缶の定常特性および動特性の理論式は、実規模の場合に対しても十分に成立する妥当なものであることが立証できた。

5-2 沸騰プロセスのモデル実験

前節5-1の実操業規模のプラントによる実験は、得られた実験結果が実規模のものであるから、スケールファクタなどの煩わしい考慮を要しない、という意味において優れた方法であった。しかしその反面、実プラントにあり勝ちなノイズが弊害となり、充分な精度で動特性の実験を行ない難い場合もある。本節で取り上げる動特性の実験はこのような場合に相当している。

本節では4-1.3項で解析を行なった沸騰プロセスの特性を実験室規模のモデル実験装置によって検証する。ここで言う沸騰プロセスとは、気相側の圧力によって沸騰中の液の沸点を操作するプロセスを意味している。このようなプロセスは沸騰蒸発を含む化学プラントのうち蒸発・蒸溜・濃縮などの単位操作中にしばしば見られるものであるが、このプロセスの動特性に関しては未だ系統的な研究はほとんど行われていない。

なお、本節においては回分式真空結晶缶の実操業に近い温度と真空度について実験を行ない、制御系設計の基礎としての動特性式を検証することに主眼を置いた。したがって、沸騰プロセスとしてのより広汎な一般的研究は含まれていない。

5-2.1 実験装置の概要

沸騰プロセス用の実験装置の構成を図5-2.1に示す。この実験装置はすべて実験室規模の大きさで構成した。また、加熱速度、缶内真空度および沸点の広い範囲に亘って実験が可能であること、および攪拌機により缶内を一樣な状態にできること、などの特徴をもたせた。以下に装置各部分の説明を行なう。

① 缶本体：ガラス製円筒容器で、全内容積は約4ℓ、50 wattの2枚パドル形攪拌機を備え、攪拌羽根の回転数は0~800 r.p.m.連続可変である。容器蓋上部に注液口2個とリーク弁1個、缶底に排出兼用の母液注入口がある。缶全体を断熱材（発泡スチレン、厚さ約50mm）で覆った。加熱は耐熱ガラスのシーズヒーター15kW（1本）。スライダックによって出力を連続調節できる。測定器としては、缶内真空度（水銀式）および液温度（サーミスタ）の各指示記録計、加熱用ヒーターのワット指示計をつけた。

② 排気系統：冷却水によるガラス製凝縮器（ジムロート、40cm）2本と脱

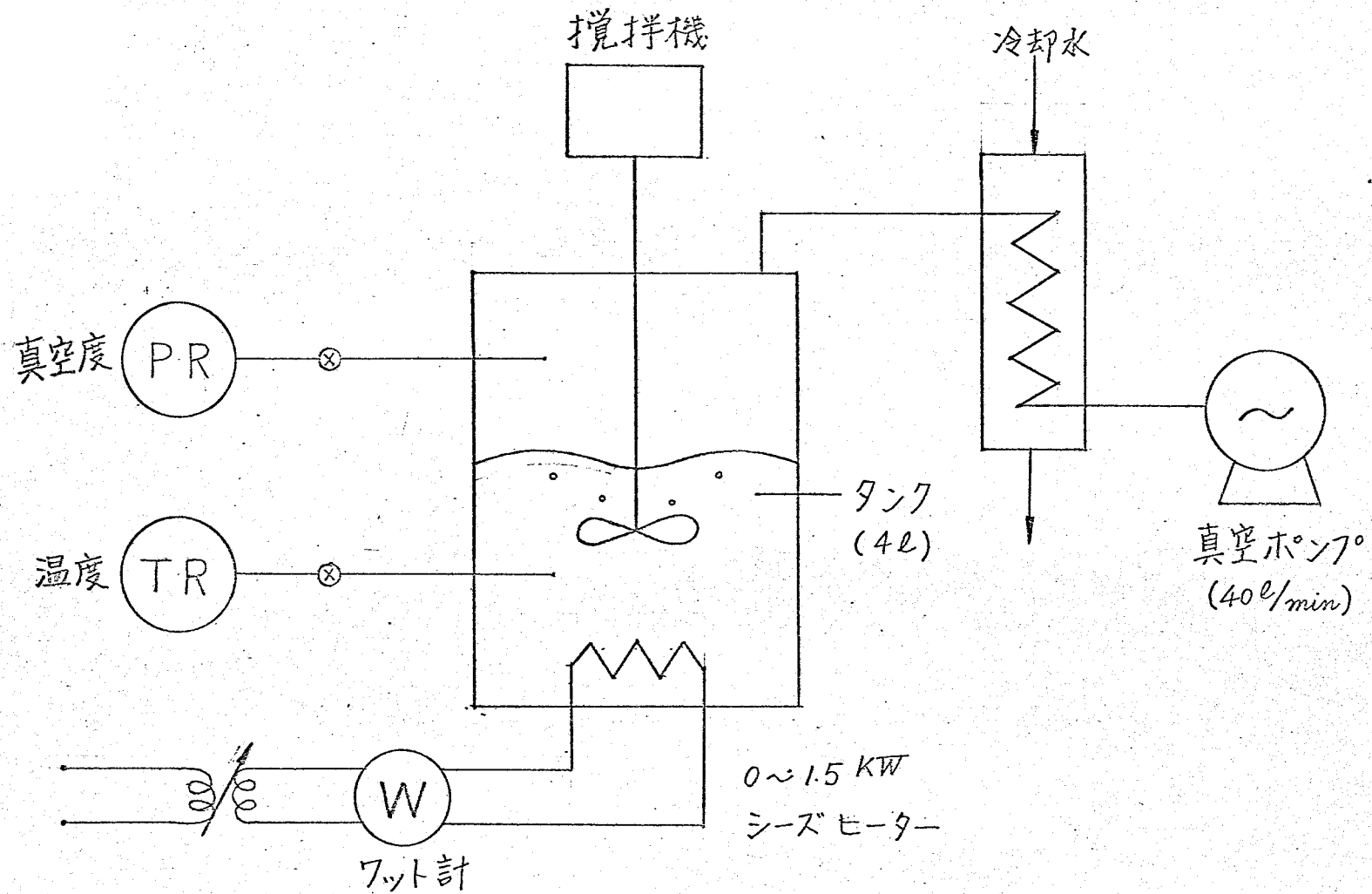
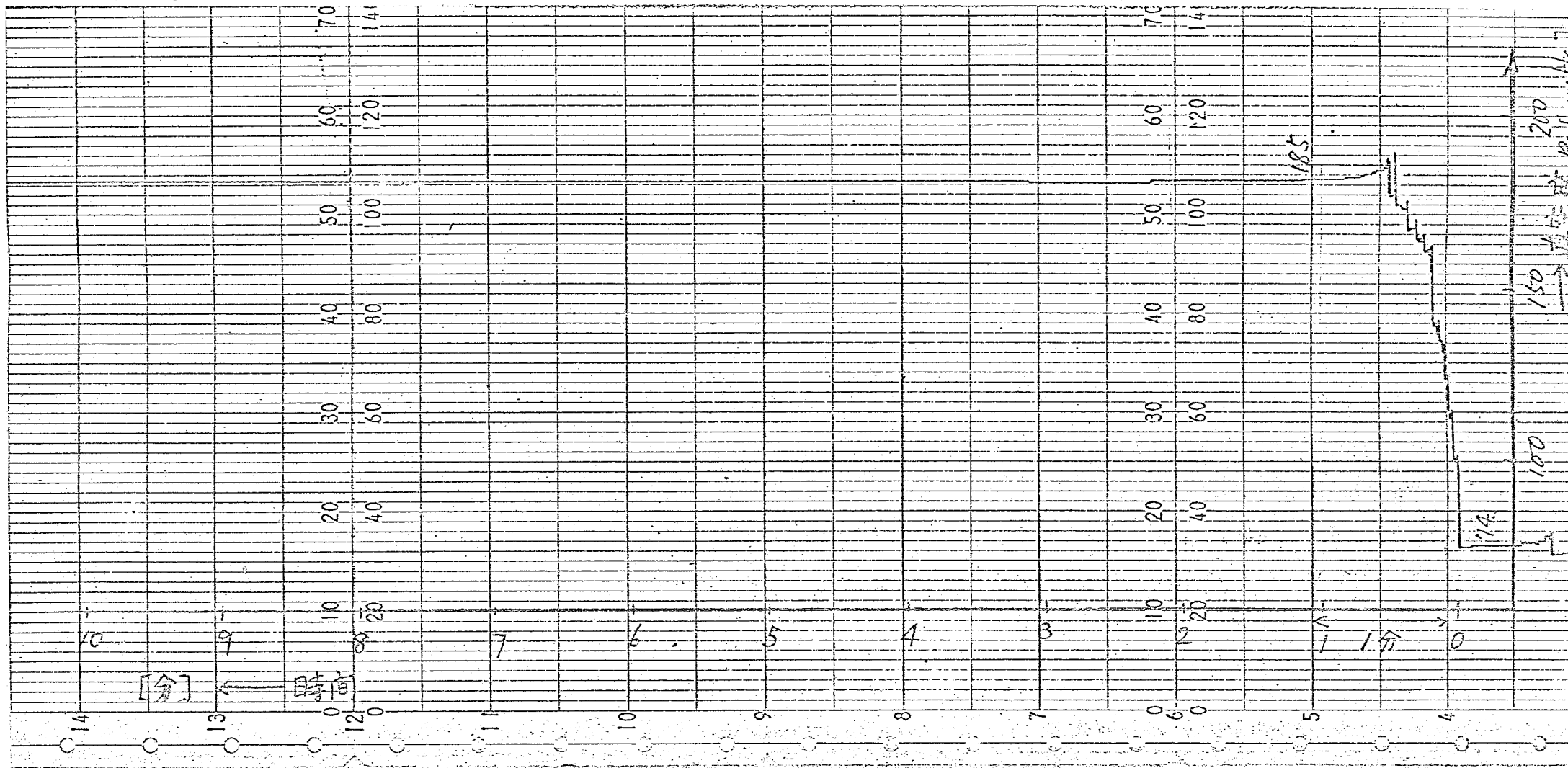
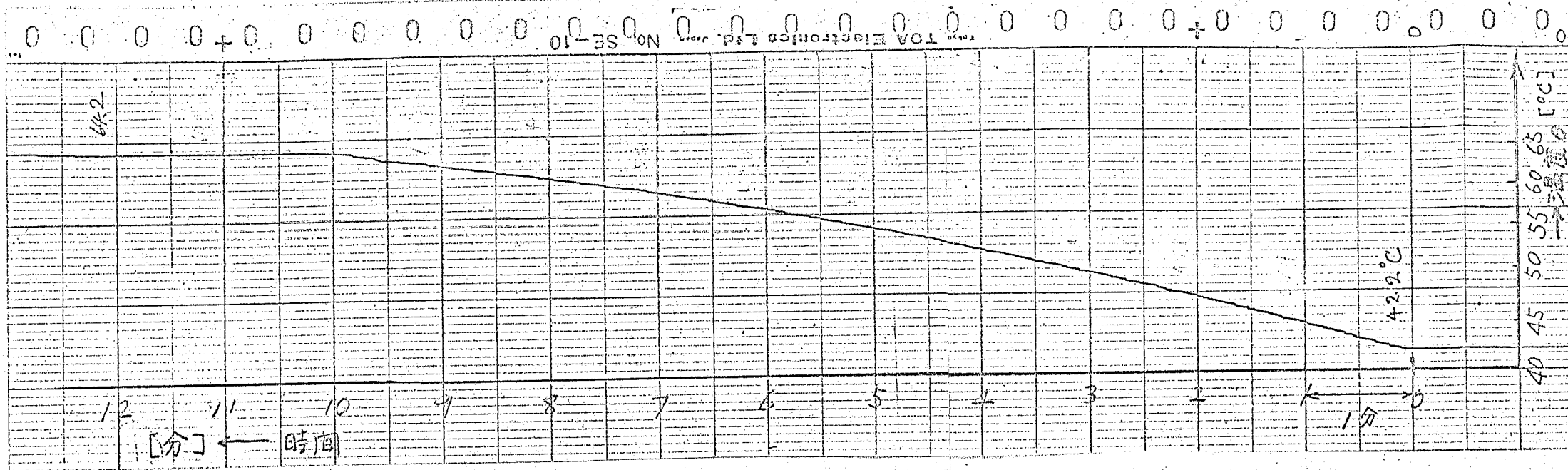


図 5-2-1 沸騰プロセスの実験装置

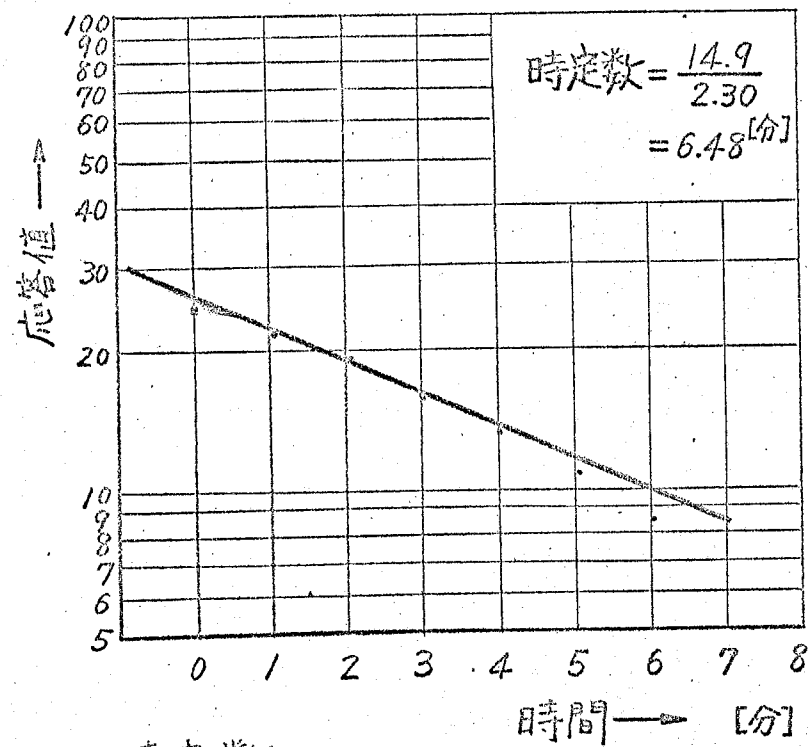


(a) 入力 ($\Delta p_s = +111 \text{ mmHg}$)

図 5-2.2 沸騰プロセスのステップ応答



(b) 応答出力 ($\Delta\theta = 22^\circ\text{C}$)



(c) 時定数

図 5-2-2 つづき

湿器(シリカゲル使用)および真空ポンプ(ゲージ型, 1/4 HP)を直列接続した。排気系統は空気漏洩をすくなくし、約1 mm Hg Abs. の真空度まで排気可能にした。

5-2.2 特性実験

本節で検証を行なう沸騰プロセスの動特性は、缶内真空度(または圧力)に対する母液の沸騰温度の応答についてである。ここでは、母液としてまず水だけの場合を実験し、つづいて蔗糖溶液について実験した。動特性の測定法はステップ状入力に対する過渡応答を用いた。缶内真空度に対する沸騰温度の動特性は4-1.3項で解析した。すなわち筆者が理論的に求めた沸騰温度 θ_m の缶内真空度 p_s に対する動特性は1次おくれ特性を示しているが、その時定数 τ は入力としての真空度の変化 Δp_s の正負によって、表4-1.2に示したようにおたたく異なる値をとっている。しかし、ゲイン定数 k_{op} は言うまでもなく異なるはい。

$$\Delta \theta_m = \frac{k_{op}}{1 + \tau \cdot s} \cdot \Delta p_s \quad (5-2.1)$$

$$\tau = \begin{cases} \tau_1 = c/\alpha & ; \Delta p_s > 0 \\ \tau_2 = c/\bar{Q}\beta e^{-\gamma(\bar{\theta}_m - \theta_m)} & ; \Delta p_s < 0 \end{cases}$$

ここで、 c : 液の熱容量, \bar{Q} : 加熱速度(定常値), $\bar{\theta}_m$: 沸騰温度(定常値), θ_m : 液の温度(定常値), α : 液と加熱面との間の熱伝達係数, β : 沸騰係数に含まれる定数(4-1.26式参照), γ である。

(実験結果)

実験はまず沸騰状態を定常化することから始めた。実験装置にはできるだけ外乱が入らぬように、冷却水流量、真空ポンプ、加熱電源などをあらかじめ十分に調整した。沸騰温度範囲は40~60°Cのある定常温度を基準として設定した。入力的大小 Δp_s は測定精度を考慮して、±60~120 mm Hgとした。沸騰液は水と蔗糖溶液について行ない、それぞれ入力 Δp_s の正負、すなわち真空度を上げた場合と下げた場合について実験した。真空度を上げた場合、時定数 τ_2 には実験定数 β が含まれているから、この β の値を実験によって求めるとともに、おとど定数であると考えられる β が他の因子にどの程度影響されるかについても

検討した。なお、缶内真空度を変える方法としてリーク弁を用いた。この実験装置ではリーク弁を十分に大きくしておいたため真空度の変化はステップ状と見られて差し支えないことをあらかじめ確認しておいた。

(a) 真空度を下げた場合 ($\Delta p_s > 0$)

定常真空度のもとで沸騰している定常状態から、加熱速度はそのままで一定に保って外気を吸入させ、缶内の真空度をステップ状に下げた場合(すなわち絶対圧力を上げた場合)、液の飽和温度がそれだけ上昇したことに伴って液はその瞬間から沸騰を停止し、やがて加熱によって徐々に温度が上昇してゆく。しかし、液の温度が真空度に対応した飽和温度近くまで上昇すると、液は再び次第にはげしく沸騰しはじめ、やがて沸騰温度に漸近的に到達する。このときの沸騰開始温度は、筆者の実験条件のもとでは、水においては沸騰温度より約2°C低く、蔗糖溶液においてはそれよりさらに沸騰温度に近いことを観察した。しかしその境界はかなり漠としており、以下に示す温度上昇の測定記録からははっきりとはかぎらないことができた。

水についての実験は、熱容量 C が一定のままで加熱速度 \bar{Q} を変えた場合、および加熱速度 \bar{Q} は一定で熱容量 C を変えた場合について行なった。また蔗糖溶液については濃度を変えた場合について行なった。それぞれの場合の時定数を片対数グラフで求め、表 5-2.1(a) および表 5-2.2(a) に結果をまとめた。ここで、実験値から時定数を求めた例を図 5-2.2 に示した。この図に見られるように、温度の応答はほとんど1次おくれ特性をあらわしていることが見てとれる。

表 5-2.1(a) および表 5-2.2(a) に示した時定数の実験値と理論値はほぼ一致しているが、最大20%、平均して約5%の差異が認められる。これは主として図 5-2.2(c) における時定数の算出法と実験中の液容量の変化に起因するものと思われる。また、液容量および加熱速度の定常値を種々に変えた水についての実験を行なった結果、表 5-2.1(a) に見られるように、これらの因子が実験値と理論値との誤差に影響を与えているような傾向は見られなかった。

(b) 真空度を上げた場合 ($\Delta p_s < 0$)

前項の場合とは逆に、缶内真空度をステップ状に上げた場合の液温度の応答について実験した。このとき、加熱速度 \bar{Q} は定常値のままで保っておくことはいくらでもよい。缶内真空度をステップ状に上げたとき(すなわち絶対圧力を下げたとき)、定常沸騰中の液は過渡的に過熱状態におかれたことに伴って、

表 5-2-1 水の場合の実験結果

(a) 温度上昇

	液容量 C [ℓ]	加熱速度 \bar{Q} [watt]	沸点変化 $\Delta\theta_0$ [°C]	時定数 (実驗値) τ_1 [min]	時定数 (理論値) τ_1 [min]
液容量一定	2.4	200	20.0	21.10	16.70
		400	26.2	11.90	11.00
		600	25.0	6.48	7.00
		800	22.6	3.90	4.72
加熱速度一定	3.0	600	26.0	9.70	9.06
			21.0	6.00	6.89
			22.0	5.83	6.38
			25.8	5.28	5.71

(b) 温度降下

	液容量 C [ℓ]	加熱速度 \bar{Q} [watt]	沸点変化 $\Delta\theta_0$ [°C]	時定数 (実驗値) τ_2 [min]	β の値 (5-2-1)式 β [1/°C]
液容量一定	2.4	600	22.6	3.26	6.30×10^{-2}
			24.0	1.70	5.92×10^{-2}
			22.9	1.48	5.46×10^{-2}
			20.3	1.45	5.08×10^{-2}
加熱速度一定	3.0	600	22.4	1.96	5.35×10^{-2}
			18.9	1.83	5.90×10^{-2}
			22.9	1.48	5.46×10^{-2}
			21.6	1.35	5.64×10^{-2}

β の平均値 = 5.62×10^{-2}

表 5-2.2 蔗糖溶液の場合の実験結果

(a) 温度上昇

(液容量 $C=2.4\text{ l}$, 加熱速度 $\bar{Q}=400\text{ watt}$)

過飽和度 Σ	濃度 $C_{mz} [\text{B}_x]$	比熱 $C [\text{Kcal/kg}]$	沸点変化 $\Delta\theta_0 [^\circ\text{C}]$	時定数 (実験値) $\tau_1 [\text{min}]$	時定数 (理論値) $\tau_1 [\text{min}]$
1.00	72.5	0.68	16.0	4.74	4.37
1.23	75.4	0.66	19.9	5.82	5.55
1.28	77.1	0.65	17.8	6.00	4.85

(b) 温度降下

(液容量 $C=2.4\text{ l}$, 加熱速度 $\bar{Q}=400\text{ watt}$)

過飽和度 Σ	濃度 $C_{mz} [\text{B}_x]$	比熱 $C [\text{Kcal/kg}]$	沸点変化 $\Delta\theta_0 [^\circ\text{C}]$	時定数 (実験値) $\tau_2 [\text{min}]$	β の値 (5-2.1) 式 $\beta [1/^\circ\text{C}]$
0.79	69.5	0.71	15.2	1.39	7.17×10^{-2}
1.00	75.4	0.68	15.4	1.02	8.14×10^{-2}
1.21	78.5	0.67	14.4	1.08	8.06×10^{-2}

 β の平均値 $= 7.79 \times 10^{-2}$

液は自己蒸発を伴いながらさらに激しく沸騰を行ない、急速に飽和温度すなわち液の定常沸点まで温度が低下してゆく。この過渡的沸騰現象は定常的沸騰現象とくらべて肉眼的に著しい差異が認められた。すなわち、定常的沸騰においては主として加熱面から気泡の発生が見られたが、過渡的沸騰においては、気泡は加熱面からだけでなく液全体から発生し、また攪拌速度を低くしたときには液表面近くでとくに激しく気泡が発生する現象が見られた。ただしここでは、このような現象そのものではなく、過渡的に液の温度がどのように変化してゆくかを巨視的立場から実験的に研究するのが目的である。

表5-2.1(b)および表5-2.2(b)に実験結果を示した。このときの時定数 τ_2 は τ_1 にくらべて予期したように一様に小さいことが分る。この実験結果が筆者の理論値、(5-2.1)式とどの程度一致しているかを調べるため、ここでは実験結果から沸騰係数を算出してその定数 β の値を求め、この β の定値性を種々の場合について比較することにした。すなわち、 β の水についての実験値は、平均 $\beta = 5.62 \times 10^{-2} [^{\circ}\text{C}]^{-1}$ であり、蔗糖溶液については平均 $\beta = 7.79 \times 10^{-2} [^{\circ}\text{C}]^{-1}$ であった。これらの平均値まわりの各実験値の偏差はそれぞれ 0.36×10^{-2} であるから、いずれも約5%の偏差に相当している。したがって β の値は実験的にそれぞれほぼ定値と見做して差し支えないことが分った。しかし β の値は定常加熱速度 \bar{Q} に多少の影響を受けていることが判明した。すなわち、表5-2.1(b)に示した熱容量一定の実験値を吟味すると、伝熱速度が大きくなるほど β の値は小さくなる傾向が見られる。しかしこれ以外の影響はほとんど見られなかった。

以上の実験の結果、沸騰係数の概念を用いた筆者の理論式(5-2.1)式は、妥当であることが検証できた。

要約

オ4章で示した回分式真空結晶缶の理論的な特性式を実験によって検証し、自動制御系の設計を行なう立場からみて、いずれの特性式も充分な精度で成立することを明らかにできた。

実験装置は実験中の蔗糖精製の回分式カランドリア形真空結晶缶を用いた。そのため、この実験規模プラントによる実験の結果はスケールファクタなどの煩わしい換算を考慮する必要なく、そのまま制御系設計に適用できる、という利点を持っている。ただし、沸騰プロセスの特性だけは、実験精度の面から、別のモデル実験装置を作製して行なった。実験装置の概略はそれぞれ図5-1-1および図5-2-1に示した。

実験は定常特性と動特性に分けて行なった。動特性試験はステップ入力による過渡応答法を採用し、その過渡応答の前後では十分に長い定常状態をとって実験精度を確保した。このようなステップ入力を用いた動特性測定法は、制御対象の出力に雑音や外乱が含まれているとき、測定精度を低下させるおそれがあるが、実験に供した結晶缶については幸いこのような欠陥はきわめてすくすく少なかった。また、求めた測定結果は筆者の測定法で充分であることを示した。

実験の結果、筆者の導いた理論式はいずれも制御工学的に充分な精度で成立することが明らかになり、理論値と実験値との最大差異は5~10%程度であることが分かった。さらに、理論式の適用限界も明確にすることができた。

特性実験のほかで、とくにカタサの動特性、定常特性および液位変動式などが検証できた結果、オ6、7章で論じた種々の最適操業と最適制御の問題解決に大きく資することができた。また、混合凝縮器を操作部として缶内真空度を制御することが一般に行なわれているが、外気吸入弁を操作部とした方がはるかに容易に制御できることを実験的に裏づけた。

6 缶内マスクットの循環特性からの 回分式真空結晶缶の操業方法の検討

缶内マスクットの循環速度は晶析現象および自然晶出にいちじるしい影響を及ぼす制御因子である。したがって結晶の仕上り品質だけでなく操業能率にも大きく影響するのが常である。このような立場から、本章ではマスクットの循環速度が、伝熱速度およびマスクットのカタサと容積に依存する機構を詳細に検討し、循環速度式および伝熱速度式を理論的に求め、これを実験によって検証した。この理論式をもとに、各種の操業方法に対する循環特性と操業能率を比較検討した。

6-1 循環特性に関する考察

マスクットのカタサが、過飽和度および缶内真空度と並んで、もっとも重要な制御量の一つであることはすでに前章までに詳述した通りである。また、カタサという量が間接的にマスクットの流動性と結晶容積分率を示していることも第4章において指摘したところである。本節では、缶内マスクット循環を重要視せねばならない意義と循環速度に影響を及ぼす因子を考察し、それによって、循環速度を支配する一つの重要な因子としてのカタサの制御の必要性を強調する。

なお、本節の議論は自然循環形、強制循環形の別を問わず、あらゆる回分式結晶缶に共通して成立することである。

(1) マスクット循環の意義と重要性

回分式真空結晶缶を能率よく運転し、結晶の仕上り品質を高め、結晶成分の収率をよくするためには、缶内マスクットの流動速度すなわち循環速度が大きくなければならない、と経験的に言われている。本項では、これらに関する従来の諸説を総括して列記し、あわせて理論的ならぬに実験的基礎にもとづいた筆者の見解をのべる。

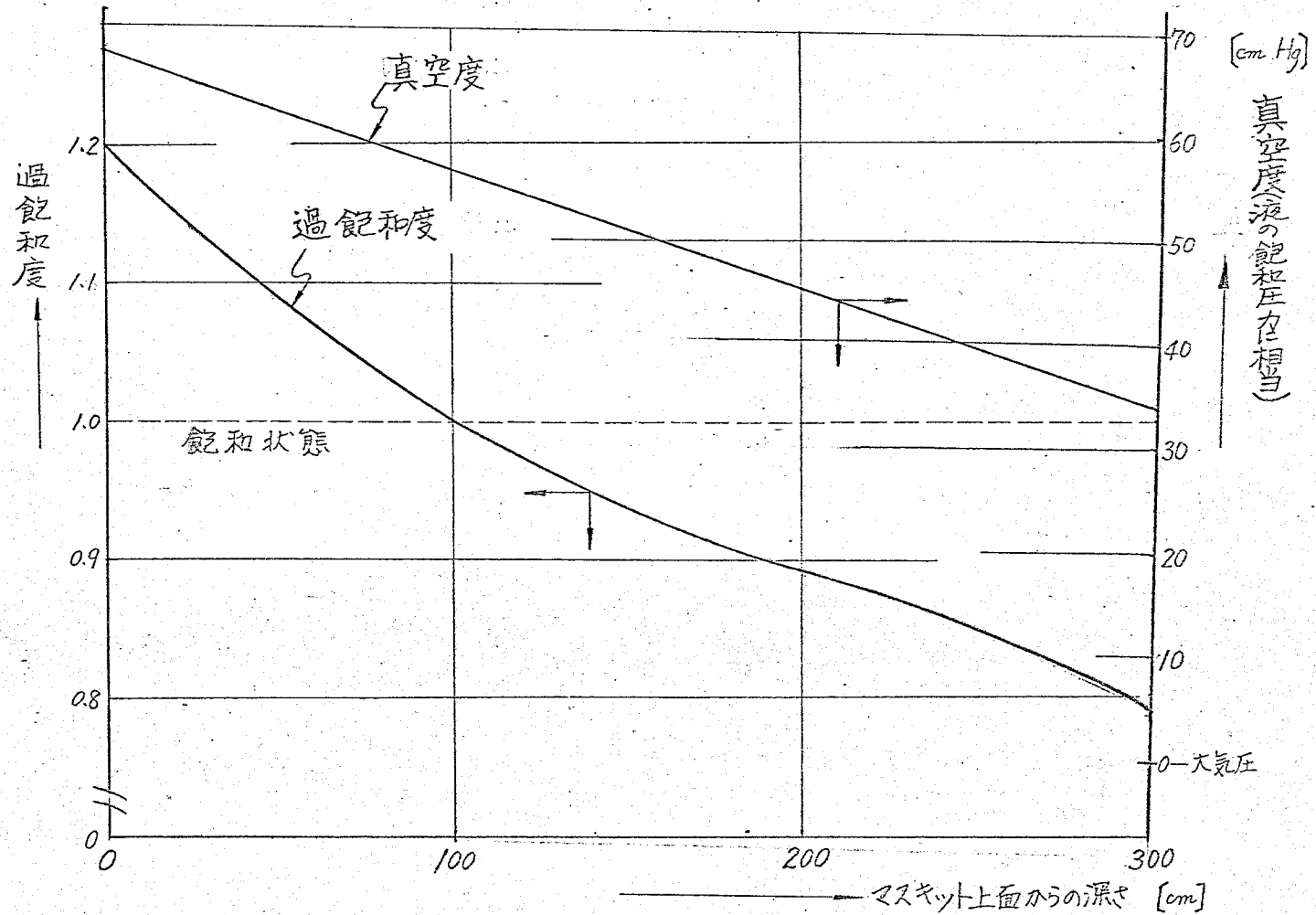
回分式結晶缶の操業に関して、マスクットの循環速度をできるだけ大きくせねばならない理由として、従来から言われている経験的弊害説⁽¹⁾は、次の通りである。すなわち、循環が悪くなることにより、起こる弊害は：

- (1) 偽晶が発生しやすくなり、結晶粒度のばらつきが大きくなる。
- (2) 結晶成長速度が低下する。
- (3) くっつき、すなわち双晶や塊晶などが発生しやすくなる。
- (4) マスクット液位の上昇に伴う液中の飽和温度の上昇、ひいては過飽和度の低下の影響をそのまま受ける。

また逆に、循環が激しすぎることによつて起る弊害としては、結晶粒子同志の激しい衝突による機械的結晶破壊があるが、通常の結晶缶内ではこのような弊害を伴うほど激しく循環することはまずあり得ないと言われている。^(*)

(1)~(4)に列記したうちで、(4)の項については明確な根拠がない、と筆者は考へる。その理由は以下の通りである。(4)で述べた理由はすなわち、液位上昇により水頭圧が加わつて液中の過飽和温度の上昇を起し、当然その結果液中の過飽和度が低下し、場合によつては不飽和濃度にも低下する。しかし乍ら一般には、このとき循環が充分であればこのような過飽和度の場所的な偏倚は小さくなり、この種の弊害は緩和される、という(4)の主張である。そこで筆者はこの説も工学的に明確にするため、力学的にベルヌーイの定理を用いて考察した。まず液位(液表面からの距離をとる)と飽和圧力および過飽和度の関係を図6-1.1に例示する。この図表はマスケットが静止状態のものである。この図で明らかのように、液表面附近において過飽和度が1.2のマスケットの液面から1m下の状態は過飽和度が1、すなわちちょうど飽和濃度になり、それ以下のマスケットは不飽和状態になっている。このような過飽和度の分布はどのような形式の結晶缶において本原理的に存在している。さてつぎに、マスケットは缶内において図6-1.2のような流れを描いて循環していることがすでに実験的にもたしかめられている。そこで、このような循環を考慮に入れたときの過飽和度の分布を次のようにして求めた。すなわち、マスケットの流れは上下方向に流動しており、液面から

(*) ただし、強制攪拌機を備えた結晶缶では、攪拌羽根附近において結晶粒子と攪拌羽根との衝突に起因して、このような現象が見られることも稀にある。



Refined sugar : purity = 100 [%]
 $C_{m2} = 88$ [°Bx]
 $\alpha = 1.20$
 $Vacuum = 66.7$ [cmHg]
 $P_s = 100$ [mmHg abs]

但: 攪拌や循環しない場合.

図 6-1-1 液位と飽和圧力, 過飽和度の関係

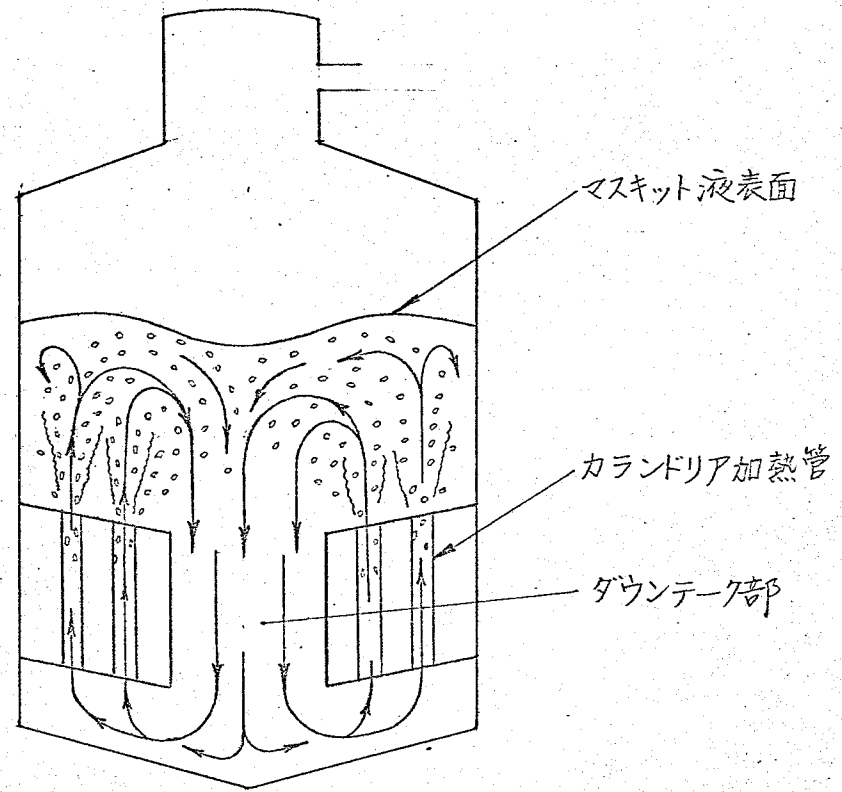


図 6-1-2 缶内マスキットの循環の様相

の深さ l における流速を v 、圧力を P とすると、ある適当な流線に沿ってベルヌーイの定理を適用すると

$$P - P_0 = \gamma_{m2} \left(l - \frac{v^2}{2g} \right) \quad (6-1.1)$$

ここで P_0 は気相側の圧力すなわち液表面における飽和圧力、 g は重力の加速度、 γ_{m2} はマスクットの比重量である。ただし (6-1.1) 式は、液表面における速度を 0 と仮定して導いた。(この仮定は流れの様相からみて許される。) また言うまでもなく、図 6-1.1 の圧力はこの式に $v=0$ とおいて求めたものに等しい。さて、常用の結晶缶では、循環速度はカランドリア加熱管内の通過速度に換算してせいぜい $1,000 \text{ m/sec}$ ぐらいであるから、循環流動がある時の飽和圧力差に及ぼす動圧水頭 $v^2/2g$ の寄与は

$$\frac{v^2}{2g} = \frac{(1,000/3600)^2}{2 \times 9.8} = 3.8 \times 10^{-3} \text{ [m]}$$

$$= 3.8 \text{ [mm]}$$

である。このように、循環によって生じるマスクット飽和圧力の減少分は、圧力水頭に換算して数ミリメートルであるから無視できるほど小さく、したがって図 6-1.1 に示した過飽和度の分布に与える影響はほとんど見られまい。以上の議論によつて、(4) で示した従来の説には明確な根拠がないことが明らかになり、た。

循環速度が低下することによつて起る弊害は、以上の筆者の議論によつて、(1)~(3) の 3 項目に集約できることが分かった。次に、これらの弊害が起る素因を各項目ごとに追究した結果、以下に述べるように、いずれの項目についても、缶内マスクットの“むら”すなわち場所的な分布ないしは偏在という概念で統一的に解釈できることが分かった。

まず(1)項に示した偽晶の発生と粒度のばらつきは過飽和度の“むら”が原因である。すなわちマスクットの過飽和度は図 6-1.1 に示したように分布しているから、液表面に近い部位では過飽和度が高く、缶底に近いほど低くなってい

る。また結晶の晶出速度論的に考えれば、偽晶の発生は高い過飽和度のもとで、ある短い時間おくれ(むだ時間)を伴ってから加速度的に進行するものが常である⁽²⁾。したがって循環速度が小さいと、高い過飽和度領域を通過する時間が長くかかり、その結果加速度的な偽晶の発生を起すものと考えられる。逆に過飽和度が低く不飽和濃度になっている出底部分の領域では結晶粒子の溶解が起る。この現象は、「結晶成長速度の低下」となってあらわれてくると考えられる。以上がマスクット全体の巨視的な過飽和度「むら」という考えに立った(1)項の解釈である。

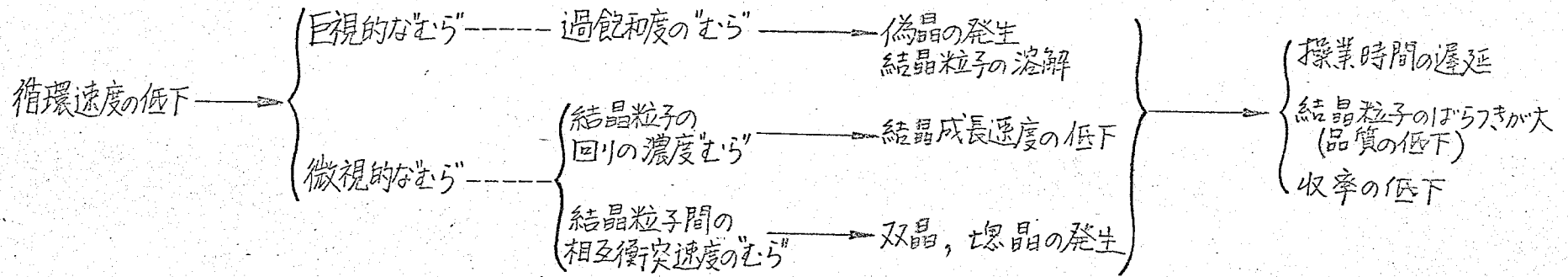
(2)(3)項は(1)項とはちがって、微視的な「むら」という立場で次のように説明できる。ここで言う微視的「むら」とは、結晶粒子1個もしくはせいぜい数個程度を含むマスクット内の微小容積内における「むら」を意味している。循環速度が小さくなるとマスクットの攪乱が少なくなり、マスクットの流れはあたかも戸流のようになり、上述の微小容積内では攪乱のすくない定常流れの状態に近いと思われる。その結果、結晶粒子まわりの濃度拡散層は厚くなり、また粒子相互の衝突速度は小さくなっていくはずである。前者が結晶成長速度の低下の原因であり、後者が双晶、塊晶の発生を助長する原因である。以上が微視的な濃度「むら」と速度「むら」にもとづいた(2)(3)項の解釈である。表6.1.1にこれらをもとめて記載し、従来の説との対応を附した。

(ii) 循環速度に及ぼす因子の準備的考察

近年の進歩した回分式結晶缶は、すべてマスクットの循環速度をできるだけ大きく保てるように設計されている⁽³⁾。しかしながら、操業の後半あるいは育晶後期から煎き締め期に至ると、煎き上げに伴う液位の上昇とカタサの増大によって循環速度がいちじるしく低下するのが現状である。

本項ではマスクットの循環速度を規定する因子について

表 6-1-1 循環速度の低下に伴う弊害



て定性的な考察と行ない。操業時におけるマスクットの液位をカタサのプログラム設定が循環速度について操業時間にいかに大きく左右するかを論じる。

循環速度は、駆動力を f 、流動抵抗を R とすると、

$$v = \frac{f}{R} \quad (6-1.2)$$

と表わすことができる。

ここで駆動力 f は、加熱部において受ける対流力と、(強制循環形結晶缶であれば)その攪拌力との和であると考えられる量である。流動抵抗 R は結晶缶の形態に起因する抵抗とマスクット自身の流動抵抗とで表わすことができる。前者の抵抗は回分操業時に制御することはできない。これに反して後者の抵抗はマスクットの複雑な流動状態やレイノルズ数によって定まるものであるから、(*)制御可能な因子をふくんでいることは確かである。従来の実験的研究によると、結晶缶内の流動はほとんども軸対称な上下循環流動であることが分っているが、この流れはさうして複雑であり、しかもマスクット自身は沸騰による気泡と結晶粒子をふくんだる相系であるから、このような場合の抵抗値を理論的に算出することは非常に困難である。

前に述べたように、回分式結晶缶操業の大きな特徴は煎き上げ操作にある。したがってマスクットの循環速度は常に缶内マスクットの状態に重点を置いて求めねばならない。と筆者は考え、なお、本章の次節以下で詳述するように、筆者は実験結果にもとづいて、液位とカタサがもっとも重要な因子であること、この両者のプログラム設定の仕方によって回分操業全期間に亘る循環速度のパーセントが定まること、ひいては操業時間と全蒸気消費量に影響すること、などの結論を得ている。

(*) フルード数の影響は、表面波の散逸が大きいから、これを無視できる。

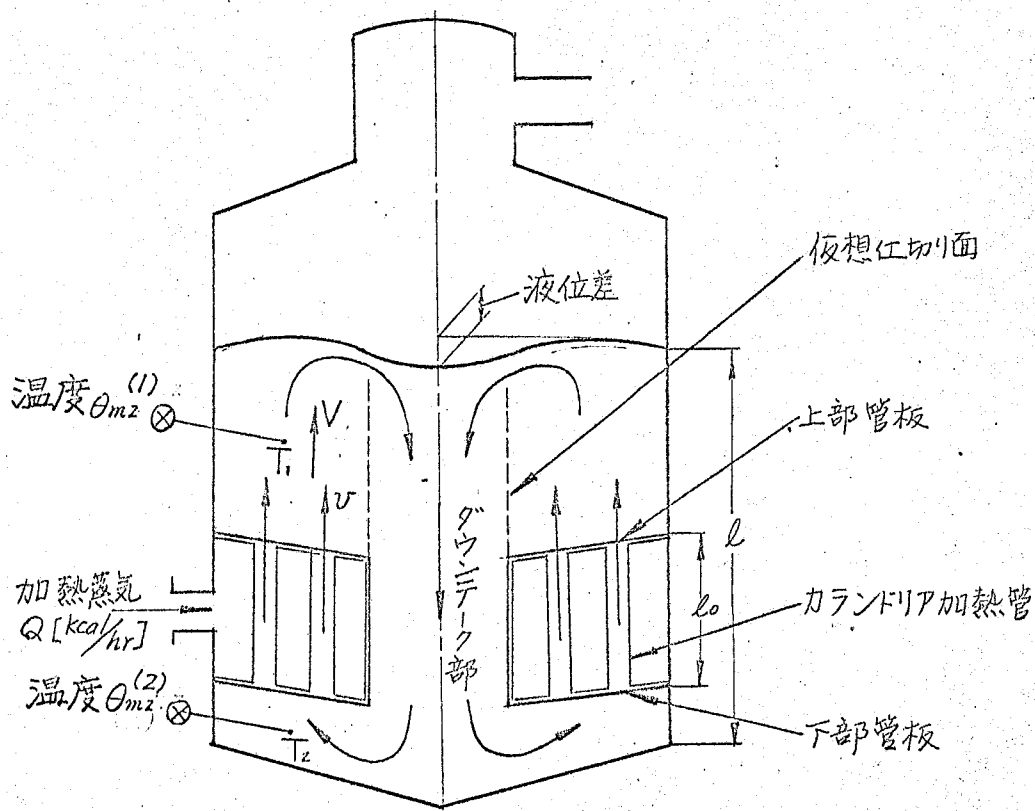
6-2 循環特性の解析

本節では回令操業中のマスクット流動速度(循環速度)と、液位やカタサなどのプロセス変量との関係を解析する。ここでは起晶期および以降の期間における循環特性について議論する。^(*) なお、ここで対象とする結晶缶の形式は攪拌槽を備えていない自然循環形のランドリア結晶缶とする。筆者は操業中の缶内流動状況を色々な角度から観察を行ない、以下に示す4つの定常的基礎式を出发点として解析を行なった。

(1) 循環の駆動力はランドリア加熱部におけるマスクットの加熱によって生じている。すなわち、ランドリア加熱管内で加熱された直後のマスクットは、沸騰を起して多数の気泡を含む状態になっており、また同時に温度上昇により液自体の比重も低下している。その結果これが自然対流力となり、マスクットに上昇力を与えている。缶内マスクットの液表面は、図6-2.1に示すように、ランドリアの真上にあたる部分が高環状になり上がり、ダウンクーラに吸込まれる中心部附近の液位とかなりの落差が観察できる。このことから、筆者は図6-2.1に点線で示す任切り円筒面を仮定し、この駆動力をあたかも煙突管に見られるようなドラフトのモデルを用いて定式化した。すなわち、ランドリア底管板の中央を原点として計った平均液位を l 、ランドリア加熱管に入る前と通過した後のマスクットの見かけ比重量差を $\Delta\gamma'_{m2}$ とすると、ドラフトすなわち駆動力を引き起こす圧力差 ΔP は

$$\Delta P = l \cdot \Delta\gamma'_{m2}$$

(*) 濃縮期における循環度は、濃縮缶の沸騰伝熱問題としてすでに多くの研究結果がある。(4)



$$Q = C_p \cdot \gamma'_{mz} \cdot (\theta_{mz}^{(1)} - \theta_{mz}^{(2)}) \cdot V$$

(V : 体積速度, v : カランドリア加熱管内の線速度)
 (C_p : マスキット比熱, γ'_{mz} : マスキット比重量.)

図 6-2.1 循環のモデル化と温度差法
 による循環速度の測定.

図6-21で示した位置で温度を測定すると、その温度差 $\Delta\theta_{m2} (= \theta_{m2}^{(1)} - \theta_{m2}^{(2)})$ は、温度の測定位置がえ適當であれば、 ΔP_{m2} に比例する。ゆえに比例係数 k_{ro} を用いて

$$\Delta P = k_{ro} \cdot l \cdot \Delta\theta_{m2} \quad (6-2.1)$$

この圧力差 ΔP が液表面の液位落差に比例しているものと思われる。

(2) マスキットの循環経路に沿って色々な流動抵抗が分布している。その中でもっとも支配的なものは、蓮根状のカラントリア部であると考えられる。^(*) カラントリア加熱管内をマスキットが流動する時の抵抗を損失水頭 ΔP で表わせば、Fanningの式により

$$\Delta P = f \cdot \frac{l_0}{D} \frac{\rho v^2}{2g} \quad (6-2.2)$$

ただし、 l_0 および D はそれぞれ加熱管の長さおよび内径、 g は重力加速度、 f は流体摩擦係数でレイノルズ数 Re の関数である。マスキットは結晶粒子と沸騰蒸気泡を含む相系である。しかも加熱管の長さ l_0 は比較的短かく、通常のカラントリア結晶缶においては l_0/D の比が6~10程度であるから、非定常流の領域がかなり大きいと見なければならぬ。このような管内流に対する摩擦抵抗の関数 $f(Re)$ は未だ充分研究されていない。そこで筆者は関数 f が単相流の場合と形式的に同じ関数形をもつと仮定して

(*) 筆者は、円筒形攪拌槽における攪拌動力から類推して、カラントリア部の流動抵抗が支配的であると考えた。すなわち邪解板のない場合に比べて円筒内壁に放射状に邪解板を附したの場合、その所要攪拌動力は飛躍的に上昇することから分っている。⁽⁵⁾ すなわち邪解板が支配的な流動抵抗を持っている証拠である。このような攪拌槽モデルは本題の結晶缶内の循環と酷似しており、循環流の流動抵抗を完全に類推できる。

$$f(Re) = K_f (Re)^{-\beta} \quad (6-2.3)$$

とおいた。ただし、係数 K_f および β の値はまったく実験的に定めるべきものである。ここでレイノルズ数 Re のとり方は、 $Re = D \cdot v \cdot \rho_{m2} / \mu_g$ (ρ_{m2} : マスキットの見かけ比重量、 μ : 同見かけ粘度) とした。見かけ粘度 μ はカタサ X に比例すると考えて差支えない。また、気泡の含有率はマスキットの見かけ比重量 ρ_{m2} に関係するが、気泡の含有率は検出しにくい量であるから、ここではその影響を考慮しない^(*)。したがって、(6-2.3)式は

$$f(Re) = K_f \left(\frac{X}{\rho_{m2}}\right)^{-\beta} \quad (6-2.4)$$

この関係式を(6-2.2)式に代入し、定数項を K_p と置けば

$$\Delta p = K_p \left(\frac{X}{\rho_{m2}}\right)^{\beta} v^2 \quad (6-2.5)$$

これが流動抵抗にもとづく損失水頭で、この値が駆動力(6-2.1)式とバランスを保つものである。

(3) カランドリア加熱部を通過したマスキットの温度上昇 $\Delta \theta_{m2} (= \theta_{m2}^{(1)} - \theta_{m2}^{(2)})$ (図6-2.1参照) とその時の加熱速度 Q を用いて流速 v を求めることができる。すなわちこのときの熱収支式から

$$Q = C_p \rho_{m2} \cdot v \cdot \Delta \theta_{m2} \quad (6-2.6)$$

加熱速度 Q は、加熱蒸気流量から求めることができる量である。

(4) カランドリア加熱管内における熱伝達式は

$$Q = A_0 U (\theta_0 - \theta_{m2}) \quad (6-2.7)$$

(ただし、 A_0 : 伝熱面積、 U : 伝熱係数、 θ_0 : 加熱管壁面温度、 θ_{m2} : マスキット温度。)

(*) この影響は次節6-3 (iii) で吟味する。

伝熱係数 U は実質的にはマスクット側の熱伝達率にだけ定まり、したがって流速 v に関係する量であると思われ得るが、カタサ α には依存しないと考えられる。^(*) したがって、ここでは伝熱機構的に類似している濃縮缶についての経験式⁽⁷⁾を用いて

$$U = U_0 (1 + R_\alpha v) \quad (6-2.8)$$

とおく。

つきに、温度差 $(\theta_0 - \theta_{m2})$ については、6-1(i)で述べたように、液位 l にもとづくマスクット温度 θ_{m2} の上昇を考慮しなければならぬ。すなわち

$$\begin{aligned} \theta_0 - \theta_{m2} &= \theta_0 - (\theta_{m2}^0 + R_{op} \delta_{m2} l) \\ &= (\theta_0 - \theta_{m2}^0) (1 - R_c l) \end{aligned} \quad (6-2.9)$$

ただし、 $R_c = R_{op} \delta_{m2} / (\theta_0 - \theta_{m2}^0)$ 、 $R_{op} = \Delta \theta_{m2} / \Delta p$ 、 θ_{m2}^0 は $l=0$ におけるマスクット温度すなわち基準温度である。

(*) マスクットを一種の懸濁液と考えると、その垂直管内流についての伝熱式は

$$Nu = 0.023 (Re)^{0.8} (Pr)^{0.4}$$

の形で与えられている。⁽⁶⁾ (Nu : ヌッセルト数, Re : レイノルズ数, Pr : プラントル数). 上式の流速 v と粘度 μ に関係する項を抽出すれば、熱伝達率 α は

$$\alpha \propto v^{0.8} \mu^{-0.4}$$

となり、明らかに粘度の影響は大きい。ここで乱流と考えられる加熱管内流の境界層厚さは一般に結晶粒子の大きさ ($0.1 \sim 0.5 \text{ mm}$) より小さいとみてよい。ゆえに、熱伝達率にはマスクット母液の粘度は考慮せねばならないが、結晶粒子の密着はしないと考えられる。ゆえにカタサ α の変動は本題の伝熱係数 U に関係しないと考えて差し支えない。

12

(6-2.8), (6-2.9)式の関係式を(6-2.7)式に代入し、変動項以外の係数を k_1 とあくと

$$Q = k_1(1 + k_2 v)(1 - k_3 l) \quad (6-2.10)$$

以上の4つの基礎式、(6-2.1), (6-2.5), (6-2.6), (6-2.10)式から循環速度 v を求めると

$$\frac{v^3}{1 + k_2 v} = k_1 l (1 - k_3 l) \left(\frac{v}{x}\right)^\beta \quad (6-2.11)$$

これが筆者が導いたマスキット液位 l 、カタサ x に対する循環速度 v の関係式である。定数 k_1 および β は実験定数で、 k_2 は β の値はカランドリア加熱管内の流動状況によって定めるべき性質のものであるから、起晶期と育晶期の境目で大巾に変ることが予想される。この(6-2.11)式はカタサ x が大きくなれば速度 v は減少することを示している。また、液位が $l = 1/k_3$ において $v = 0$ となる。この状態は $\theta_0 = \theta_{m2}$ すなわちマスキットの液位上昇によって飽和温度が上昇し、ついに加熱蒸気温度と等しくなった時の状態を表わしている。なお、(6-2.11)式は、式の誘導過程から考えると、液位 l がカランドリア加熱管の長さ l_0 より低いような場合に適用することは避けねばならない。

6-3 実験およびその結果と吟味

第5章で示したものと同一規模の回転式真空結晶缶について得た循環速度の実験結果を述べ、6-2で求めた理論式との照合および考察を行った。その結果、起晶期と育晶期以降とは異なる循環速度式で表わされることわかった。

(1) 循環速度の測定方法

マスクットの循環速度を測定する方法としてはすでに各種の原理が発表されている。⁽⁸⁾ 筆者が用いた方法は“温度差法”とも言うべきもので、図6-21にその概略を示した。すなわち、カランドリア加熱部を通過することによって得られるマスクット温度差 $(\theta_{m2}^{(1)} - \theta_{m2}^{(2)})$ とそのときの加熱速度 Q とを測定することにより、体積速度 V は

$$Q = C_p \gamma_{m2} (\theta_{m2}^{(1)} - \theta_{m2}^{(2)}) V \quad (6-3.1)$$

の関係で間接的に求めることができる。ここでマスクットの比熱 C_p および比重量 γ_{m2} はマスクット温度と濃度とから算出できる値である。この測定方法によると流速の微小な変動や位置的な流速分布を測定することは困難であるが、温度計の位置が適当であれば流速の位置平均値を求めるのに適切であり、本章の目的には充分である。温度計感温部下の取付け場所は、カランドリア上部管板から約400mm上の、缶壁から350mmはなれた位置で測定した。また温度計 T_2 はカランドリア下部管板の直下に取付けるのがよいと言われている。⁽⁹⁾ しかし筆者の経験によると、この場所は缶底から吹き込まれる注入液の流れによって温度むらが存在し、マスクットの平均温度を測るにはふさわしくない懸念があったので、あえてダウンテーク寄りの管板下に取付けた。なお、以下において循環速度はカランドリア加熱管内の平均線速度 v [m/hr]を用いて表わすことにする。(6-3.1)式に示した体積速度 V と v と

の関係は、カランドリ管加熱管の全断面積を a とすると $aV=V$ である。

(ii) 実験結果

実験に供した回分式真空結晶釜の構造、使用した蔗糖溶液の組成、その他の詳細はすでに5-1.1節に示した通りである。実験の全般的な経過は図5-1.9に集録されている。また(6-3.1)式および(6-2.7)式の関係を用いて循環速度および伝熱係数を求めた。10分ごとの実験値で計算した値を表6-3.1および図6-3.1に示した。ここで、加熱速度 Q および伝熱係数 U の計算に用いた方法は(4-2.29)式の方法と同じである。また循環の程度を表わす量として循環率 N を定めさせて記した。循環率 N は、単位時間に循環するマスクットの流量 V がその時のマスクット全容積 V_m の何パーセントに当るか、を主量であるから、循環の程度を直感的に把握しやすい特徴がある。図6-3.1に見られるように、次の大きな特徴を明確にすることができた。すなわち、

- (1) 起晶期と育晶期以降の循環速度を比較すると、マスクットの流動状況に大きな質的な変化が見られる。このことはすでに前節で予想されたところである。その原因はカランドリ管加熱管内の流動抵抗と伝熱係数の急激な特性値変化が起、たからである。詳細な議論は次項で述べる。
- (2) 循環速度は育晶期の初期に最大値をとり、その後急激に下降をうけている。
- (3) 循環速度の最大値と伝熱係数の最大値とは同じ時期にあらわれている。

(iii) 理論式との比較および吟味

はじめに、伝熱係数 U が(6-2.8)式で示したように循環速度 v の関数として表わすことができることを確かめ、ついで筆者が導いた循環速度 v に関する(6-2.11)式の妥当性を示して係数 k, β の値を定める。

表 6-3-1 循環速度の実験

操業開始 後の時刻 t [分]	加熱蒸気 流量 W_0 [kg/hr]	加熱速度 Q [Kcal/hr]	加熱蒸気と マスクの 温度差 $\theta_0 - \theta_{m2}$ [°C]	伝熱係数 U [Kcal/hr m ² °C]	(6-3-1)式の 温度差 $\Delta\theta_{m2} = \theta_{m2}^{(1)} - \theta_{m2}^{(2)}$	マスク循環速度		
						V [m ³ /hr]	v [m/hr]	N [%/min]
20	5.620	2.44×10^6	86.0	290	2.35	1.19×10^3	238	(124)
40	5.220	2.26×10^6	87.0	266	2.85	0.91×10^3	182	(95)
60	5.500	2.37×10^6	86.0	282	2.70	1.01×10^3	202	(112)
80	5.300	2.29×10^6	84.2	279	3.30	0.80×10^3	160	92
100	5.640	2.44×10^6	77.8	320	3.45	0.81×10^3	162	93
120	5.840	2.56×10^6	69.5	378	1.36	2.15×10^3	430	210
140	5.720	2.50×10^6	71.0	360	1.70	1.68×10^3	336	136
160	4.960	2.16×10^6	75.9	296	1.13	1.34×10^3	267	98
180	4.200	1.83×10^6	80.7	232	2.13	0.99×10^3	198	59
200	3.740	1.63×10^6	78.5	212	0.85	0.22×10^3	44	12
220	3.320	1.45×10^6	75.7	196	0.93	0.18×10^3	36	9.4
240	—	—	—	—	(-0.05)	—	—	—

N : 循環率 = $(V/V_m) \times 100$ [% vol/min]

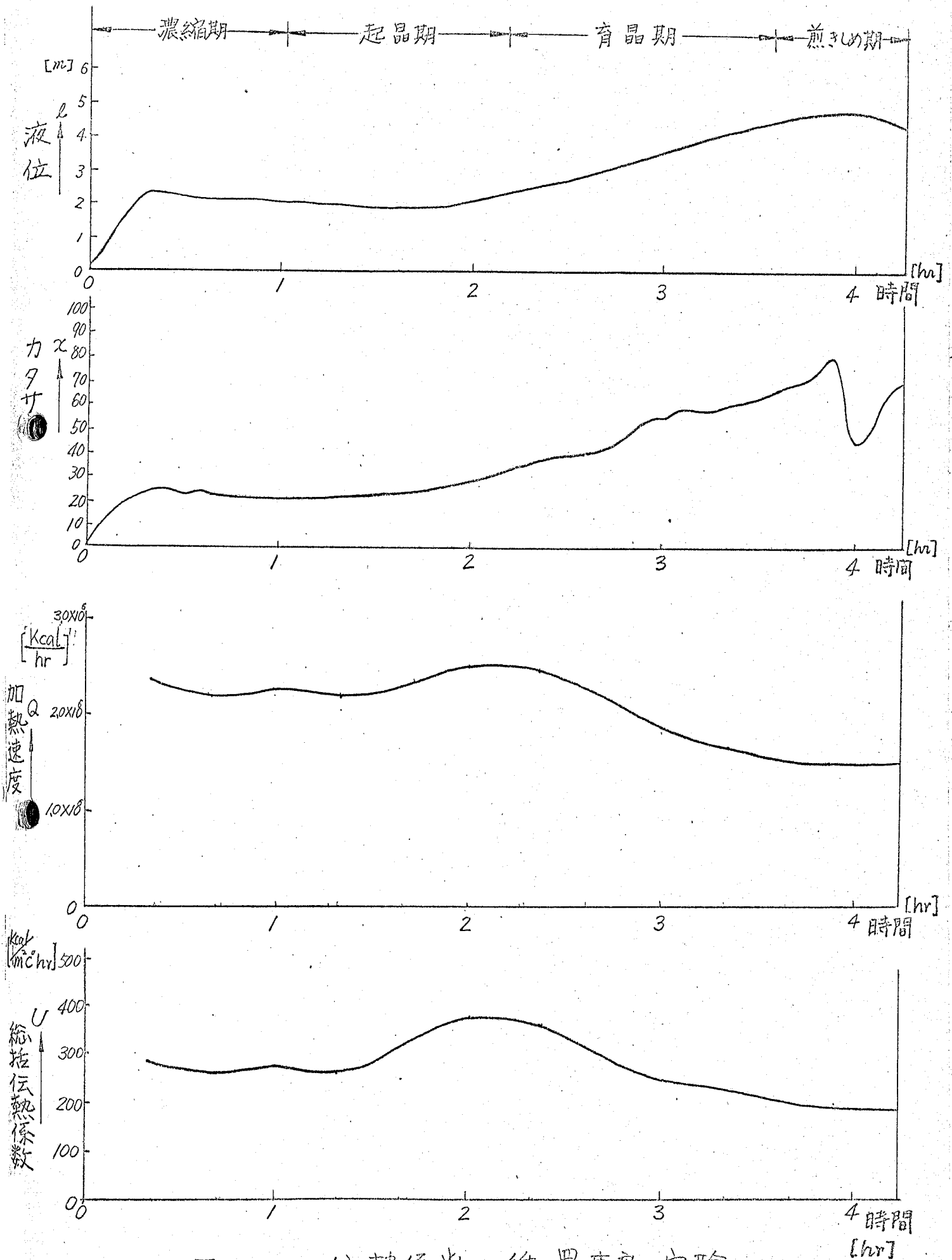


図6-3.1 伝熱係数と循環速度の実験

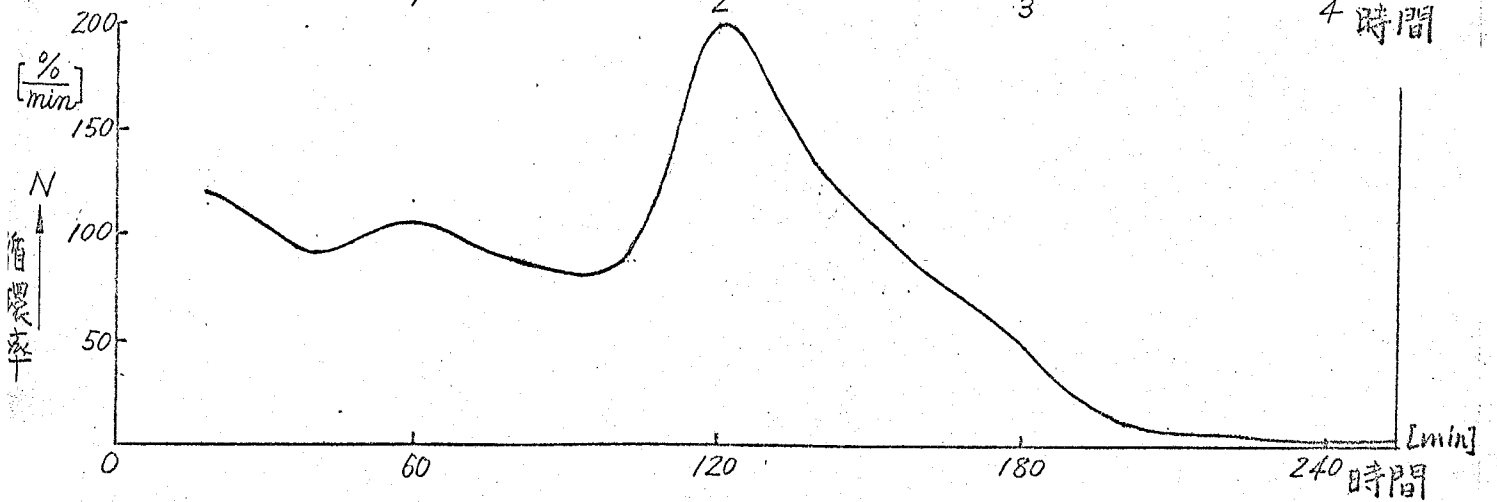
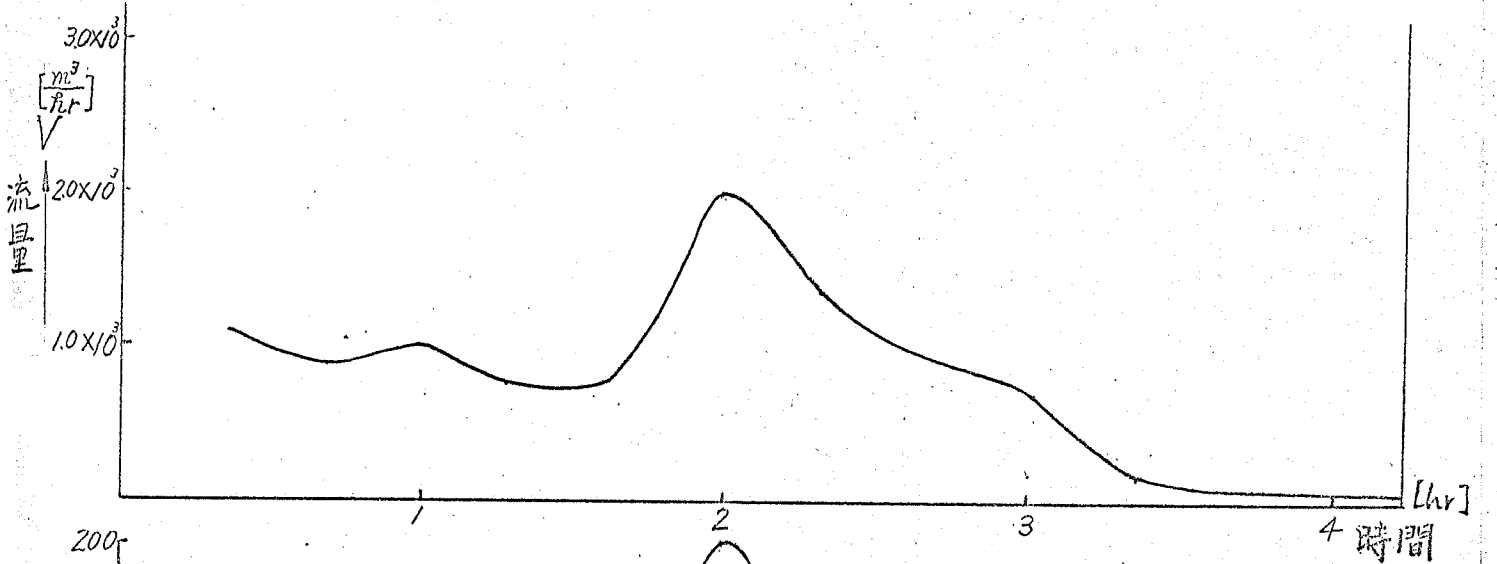
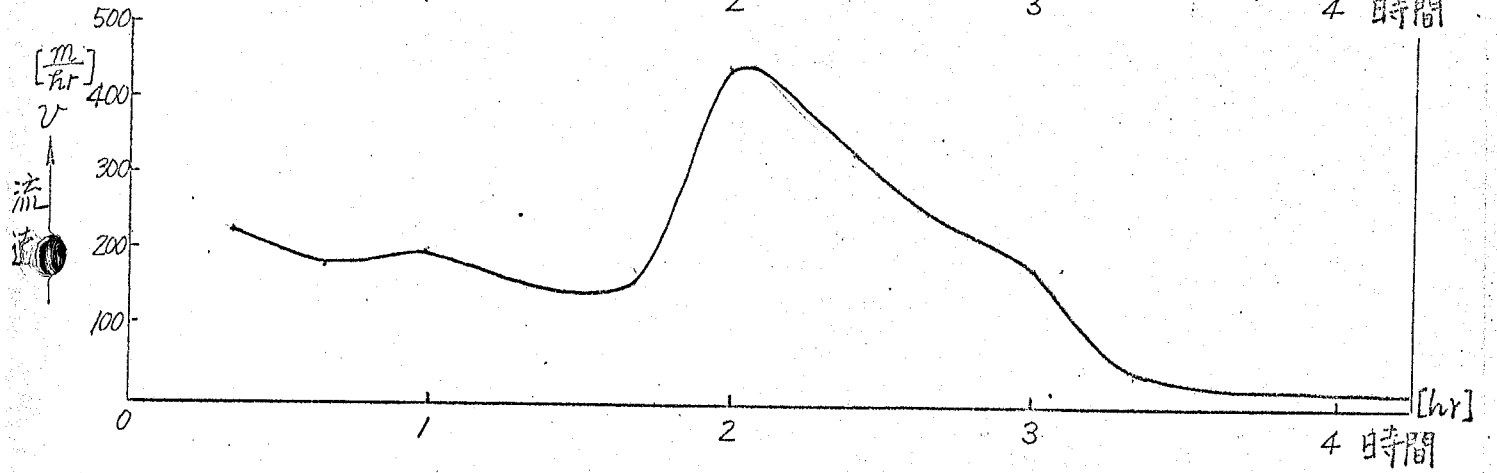
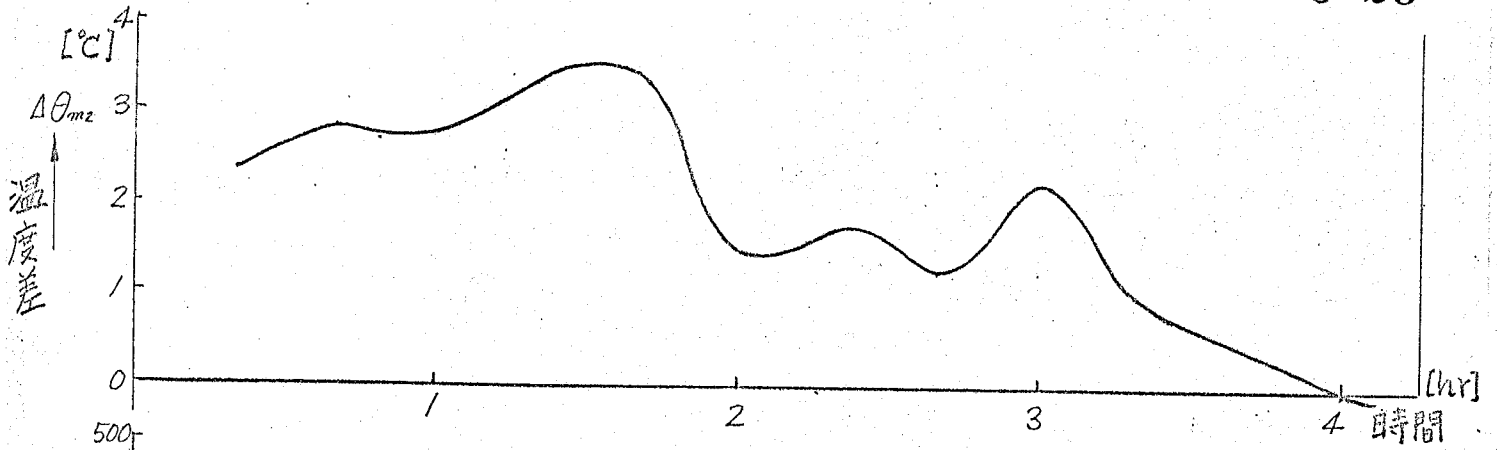


図 6-3-1 (フグキ)

15

表 6-3.1 および 図 6-3.1 で示した伝熱係数 U と循環速度 v とをグラフ上にプロットしたところ (図 6-3.2), 両者の間に線形関係が認められ, (6-2.8) 式の関係がかなりの精度で成立することから, 図 6-3.2 から係数 U_0 および ka を決定した。

$$U = 185 (1 + 2.62 \times 10^{-3} v) \text{ [kcal/hr} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{C]} \quad (6-3.2)$$

すでに述べたように, (6-2.8) 式はもともと濃縮缶について近似的に成立する関係式であるが, 結晶缶についても近似的に成立することからここに始めて分る。ただし (6-3.2) 式の成立範囲は $v = 40 \sim 450 \text{ [m/hr]}$ である。

さてつきに (6-2.11) 式を用いて実験値を整理し, 表 6-3.2 および 図 6-3.3 にまとめた。ただし, 実験値を整理しやすくするため (6-2.11) 式を次のように変形した。

$$\frac{v^3}{(1 + ka v)} \cdot \frac{1}{l(1 - Re_l l)} = K \left(\frac{v}{\lambda} \right)^\beta \quad (6-3.3)$$

ここで, $ka = 2.62 \times 10^{-3} \text{ [hr/m]}$, $Re_l = 0.311 \text{ [m}^{-1}]$ である。
(Re_l の値は (6-2.9) 式にもとつき, 蔗糖溶液について計算した値である。)

図 6-3.3 で示す通り, (6-3.3) 式の係数, l にかゝって関数形は大きく 2 つに分かれている。すなわち, その 1 つは $t = 100$ 分までの起晶期に相当する期間の値であり, 他 1 つは $t = 120$ 分以後の育晶期以降に相当する期間の値である。筆者が実験した結晶缶, 榨業方法, 糖種に関する (6-3.3) 式の係数 β , K の値は

$$\text{起晶期: } \beta = 2.52, \quad K = 2.6 \times 10^4$$

$$\text{育晶期: } \beta = 1.38, \quad K = 6.8 \times 10^5$$

であった。

このように, 起晶期と育晶期との間に循環の流動状態の大きな差異が生じる現象は次のように解釈できる。
(6-3.3) 式の係数 β の値が異なるということから, もとの基礎式 (6-2.3) (6-2.4) 式の意義から考えて, これはとりも直さず循環のレイノルズ数に関する流動抵抗の関数形が異なる

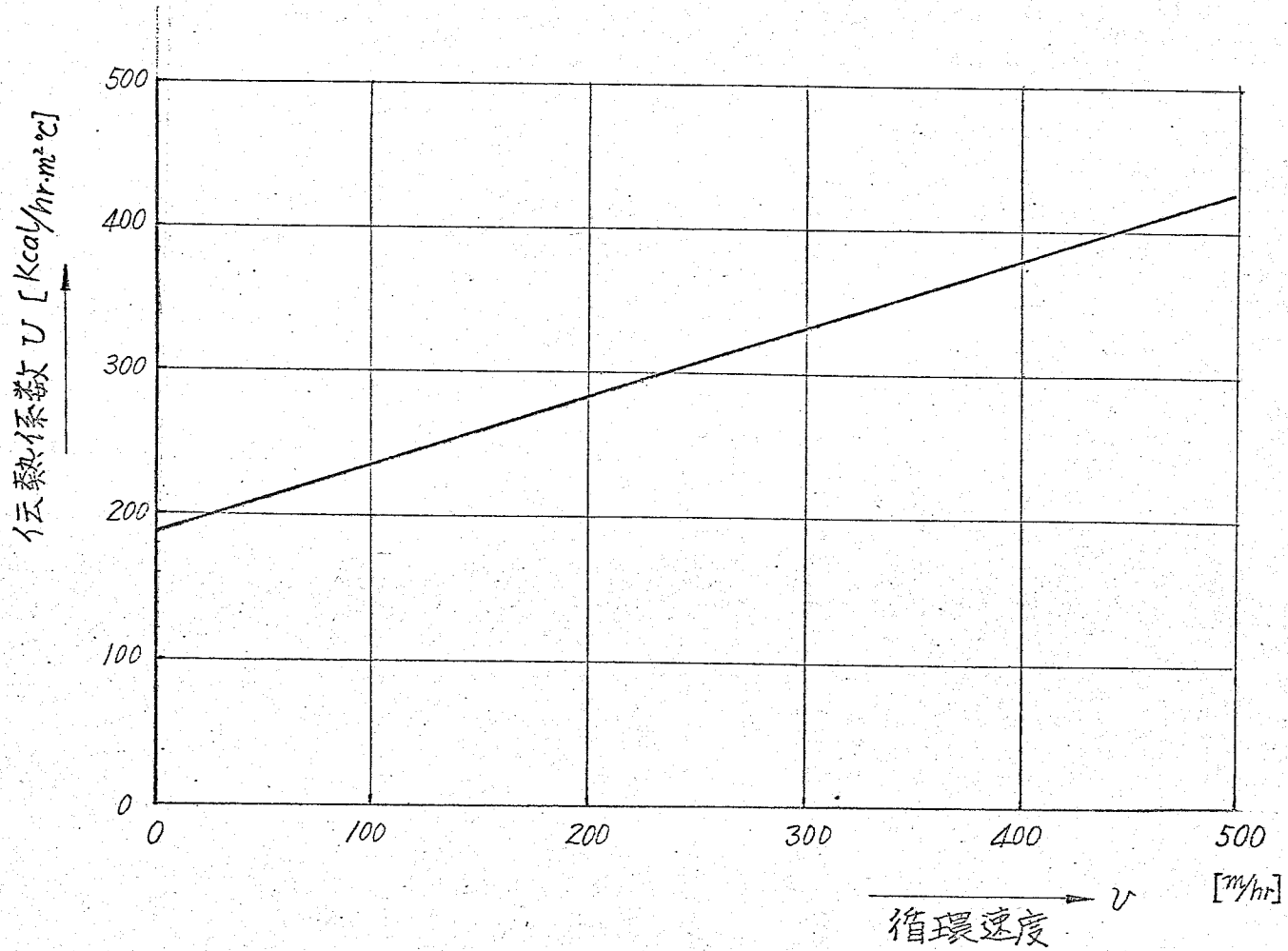
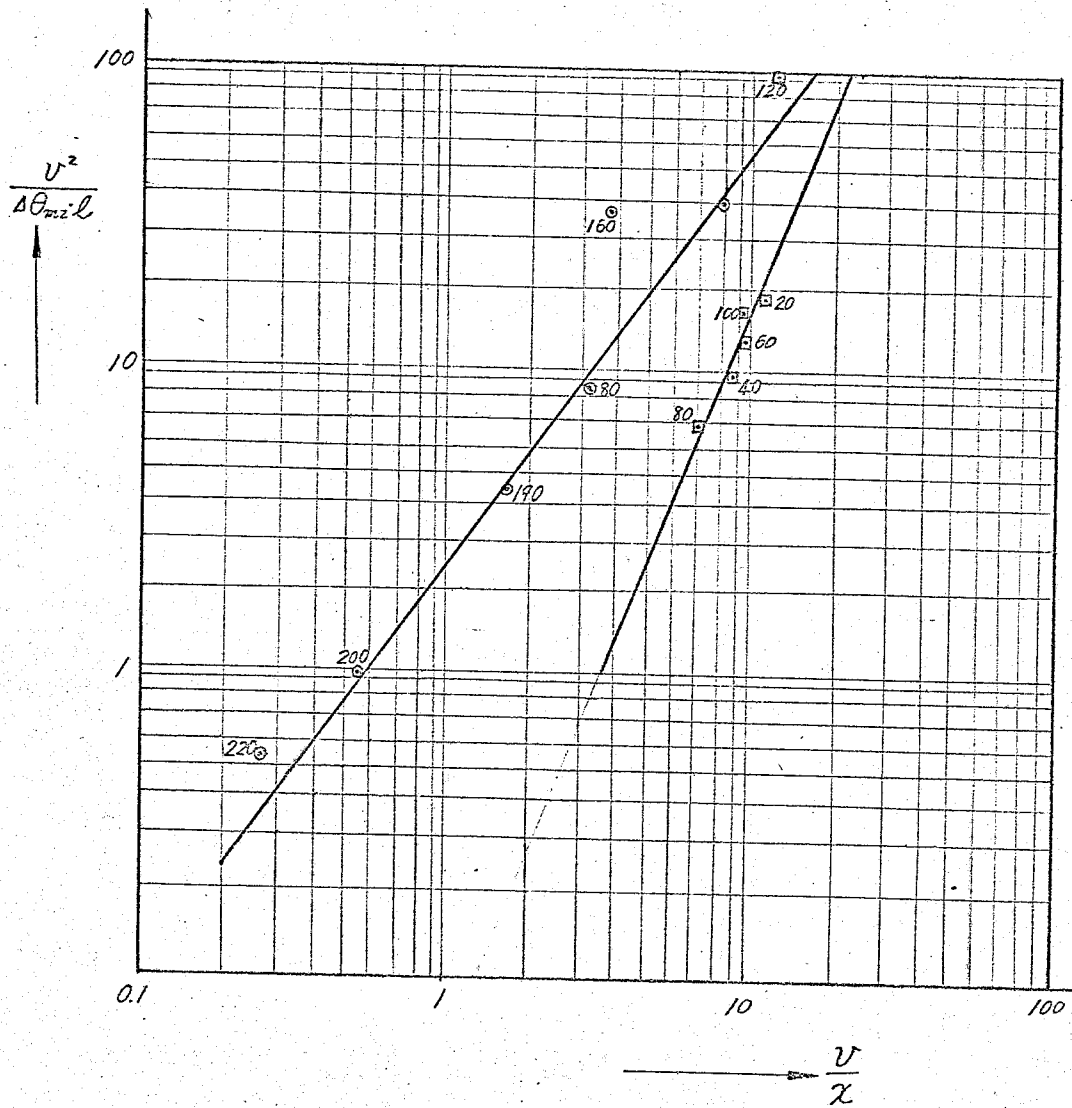


図 6-3.2 伝熱係数と循環速度との関係

表6-3-2 (6-2-11)式による実験値の整理

t	$\frac{[m/hr]}{v}$	$\frac{v^3}{(1+2.62 \times 10^3 v)}$	$\frac{[m]}{l}$	$l(1-0.311l)$	$\frac{v^3/(1+2.62 \times 10^3 v)}{l(1-0.311l)}$	v/x
20	238	8.31×10^6	1.3	0.775	10.7×10^6	11.32
40	182	4.08×10^6	1.26	0.766	5.33×10^6	8.67
60	202	5.39×10^6	1.22	0.758	7.11×10^6	9.28
80	160	2.89×10^6	1.14	0.735	3.93×10^6	7.28
100	162	2.99×10^6	1.18	0.747	4.00×10^6	6.23
120	430	37.41×10^6	1.38	0.75	47.45×10^6	13.05
140	336	20.16×10^6	1.66	0.803	25.10×10^6	8.19
160	190	4.58×10^6	2.02	0.751	6.10×10^6	3.66
180	198	5.72×10^6	2.24	0.699	7.54×10^6	3.25
190	120	1.315×10^6	2.35	0.632	2.08×10^6	1.67
200	44	0.076×10^6	2.42	0.598	0.13×10^6	0.54
220	36	0.042×10^6	2.57	0.517	0.081×10^6	0.27



(註) 図中の数字は
 操業開始後の
 時間[分]を表わす。

図 6-3-3 実験値による(6-2-11)式の係数決定

16

っている。という事を意味している。そこで、起晶期と育晶期における流動状況の差を考えると、結局沸騰に伴う加熱管内での沸騰形態の差に帰するよりほかに原因は考えられない。すなわち、ランドリア加熱管内では常に激しく沸騰しているから、起晶期においても育晶期においても乱流的な流動をしていると考えられる。^(*) また、操作の面から考えると、起晶期においては循環補助の温水を、育晶期においては煎き上げの母液とそれを注入するが、この注入はいずれも結晶缶の底部から行われ、直接ランドリア加熱管に流入しやういように注入されている。したがって注入されたばかりの温水や母液は、缶内を循環しているマスクットと完全に混合することなく加熱管に流入し、加熱され沸騰するものと思われる。このとき、注入されたばかりの母液とマスクット母液との物性値の差に比べて、注入された温水とマスクットとのその差は大きく、必然的に加熱管内での沸騰の状況、すなわち気泡の含有率やその大きさ、また缶内での分布など、に著しい差異が生じているものと思われる。この現象は直接肉眼で確かめることはできないが、ランドリア加熱管から噴出し上昇するマスクットの流れを観察すると、上述のような状況の変化を推察することが出来る。

ゆえに筆者は、係数 β の値の起晶期と育晶期における差異は、ランドリア加熱管内での沸騰形態の違いにもとづく流動抵抗係数の差異に起因するものであると考え

(*) 沸騰による気泡の発生がなければ、マスクットの加熱管内流動は理論的には ρ 流域に属している。なぜならば、このときのレイノルズ数は $Re = 5 \sim 500$ ($v = 0.11$ [m/sec], $d = 0.1$ [m], $\nu = 1.3 \times 10^{-4}$ [m²/sec], $\phi v = 0 \sim 0.4$ の値) である。この値は管内流に対する臨界値 2,300 以下である。ゆえに ρ 流域にある。

る。

なお、(6-3.3)式における係数 β および K の値は、筆者の6回分に亘る実験によると、表6-3.3に示す値であった。

さて、つぎに図6-3.1に示した実験について、得られた理論値と実験値との比較を行なう。すなわち、係数として図6-3.3の値を用いると、起晶期における速度 v は(6-2.11)式より

$$\frac{v^{0.48}}{1 + 2.62 \times 10^{-3} v} = 2.6 \times 10^4 \frac{\ell(1 - 0.311\ell)}{\chi^{2.52}} \quad (6-3.4)$$

同様に育晶期では

$$\frac{v^{1.62}}{1 + 2.62 \times 10^{-3} v} = 6.8 \times 10^5 \frac{\ell(1 - 0.311\ell)}{\chi^{1.38}} \quad (6-3.5)$$

これらの両式に図6-3.1に示した各時点のカタサ χ および液位 ℓ の値を代入し、計算した理論的循環速度 v と伝熱係数 K とを、それぞれ図6-3.4および図6-3.5に示した。伝熱係数 K の理論値は(6-2.8)式を用いて計算した。

このように、理論値と実験値はかなりの一致を示しているが、起晶期と育晶期との切換え点(図では $t=110$ 分)附近では実験値は両曲線を平滑に連結した値をとっていることが分る。

表6-33 係数 β , Kの値 (FEL (6-21)(6-33)式参照)

	起 晶 期	育 晶 期
β	2.52 ~ 3.07	1.38 ~ 1.60
K	$2.6 \times 10^4 \sim 7.5 \times 10^3$	$6.8 \times 10^5 \sim 4.2 \times 10^5$

(蔗糖用カランドリア形真空結晶缶の値)

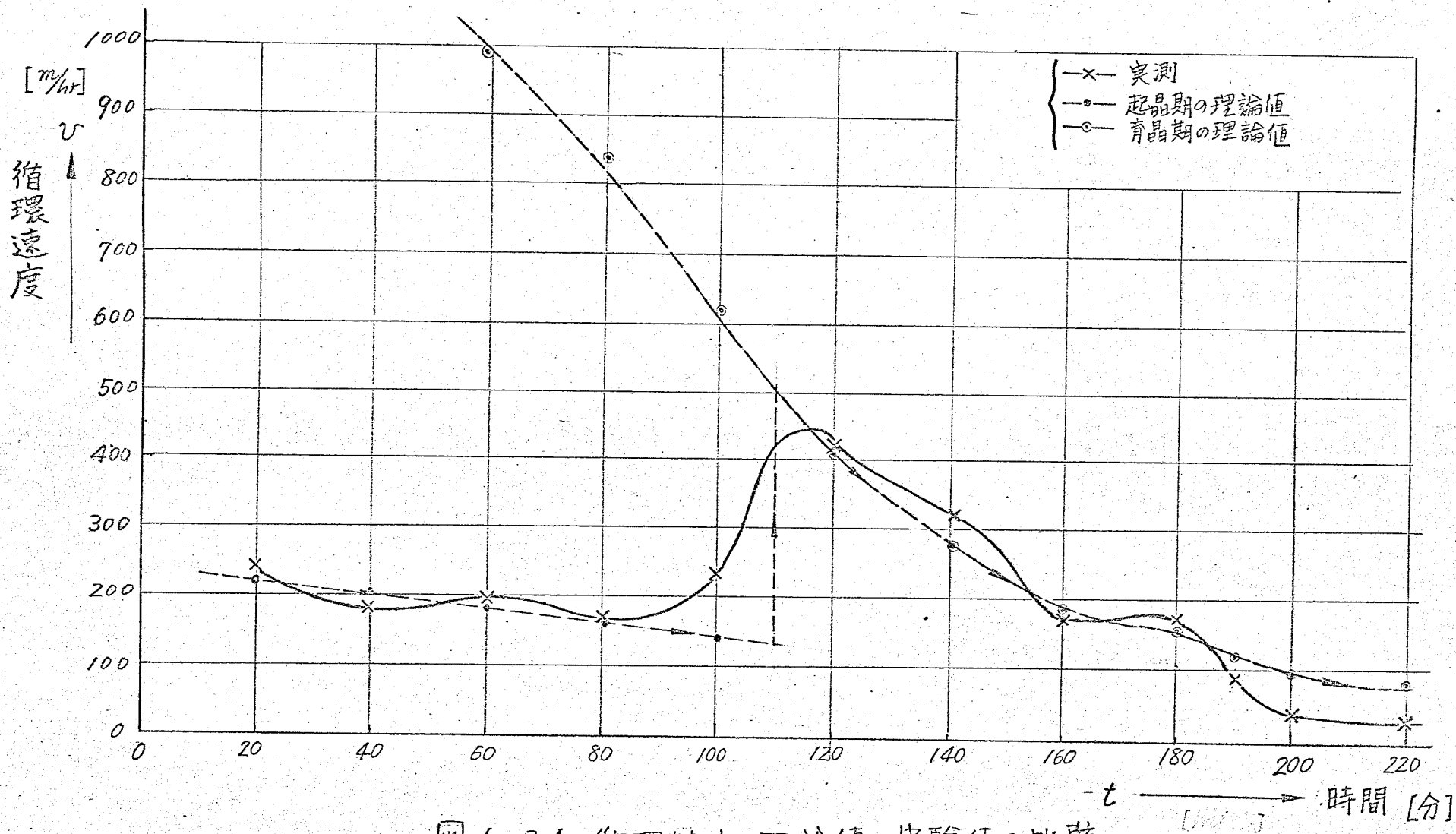


図 6-3.4 循環速度の理論値と実験値の比較

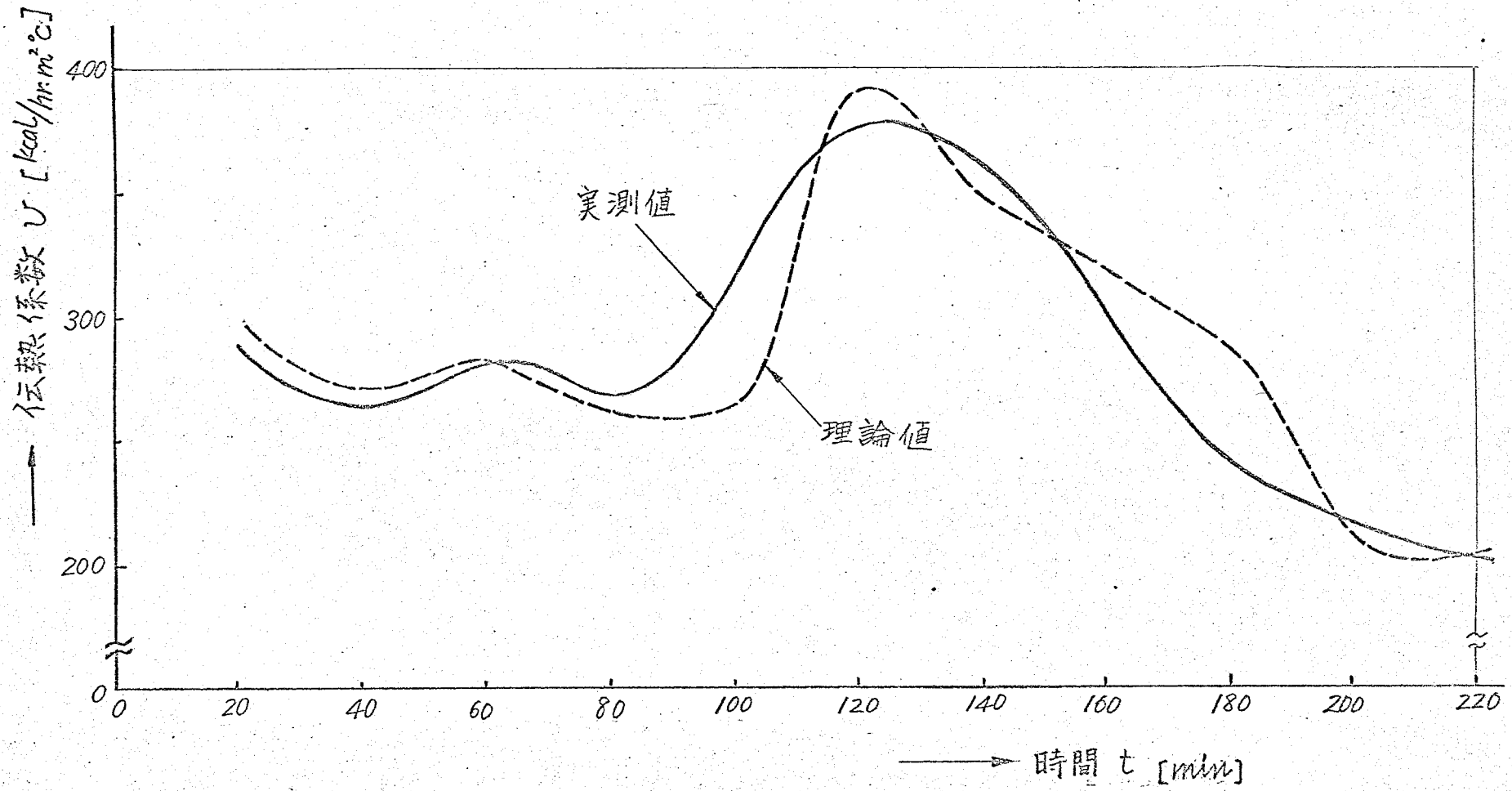


図 6-3-5 伝熱係数の理論値と実験値の比較

6-4 各種の操業方法における循環特性の比較検討

前節までにおいて、マスキットの循環速度がカタサ α と液位 h との関数として表わすことができることを明らかにした。すでに第4章で指摘したように、カタサのプログラムの設定法は煎き上げ操作だけでなく、操業時間や製品の仕上り品質にも大きく影響を与える重要な操業因子である。本節では、現在多方面で経験的に採用されているカタサのプログラムに着目してそれぞれの循環速度を比較検討する。

各方面で経験的に採用されているカタサのプログラムを大別してここでは2種類に分けた。そのうちの一つはカタサを液位に関係なく一定に保つ方法で、他の一つはカタサを液位の上昇とともに増大させる方法である。言うまでもなく、これらはいずれも育晶期においてとられている方法であり、起晶期では液位はほとんど変わらず、カタサは自然に増大するままで、とくに制御されてはいないのが常である。すでに求めた循環速度(6-3.5)式は直感的にやや理解しにくい関数であるから、本節では上述の2種類のプログラムについて循環速度の差異を筆者の実験にもとづく具体的な数値例を用いて比較する。さらに両者の循環速度の差が結晶成長速度については操業時間に影響を及ぼすという観点から、両プログラムの検討を行なうことにする^(*)。

育晶期における循環速度 v は、実験定数として表6-3.3の平均値を用いると

$$\frac{v^{1.5}}{1 + 2.62 \times 10^{-3} v} = 5.0 \times 10^5 \frac{h(1 - 0.311h)}{\alpha^{1.35}} \quad (6-3.5)$$

さて、カタサ α を一定値 α_0 に保つたときの循環速度 v は

(*) 循環速度が結晶の仕上り品質に影響を与える点については第7章で詳述する。

上式に $x = x_0$ とおくと

$$\frac{v^{1.5}}{1 + 2.62 \times 10^{-3} v} = \frac{5.0 \times 10^5}{x_0^{1.38}} l (1 - 0.311 l) \quad (6-4.1)$$

つぎに、カタサ x を液位 l の上昇に伴って増大させたときの循環速度 v は、 x と l との関係を

$$x = al + b \quad (6-4.2)$$

とすると、(a, b は定数),

$$\frac{v^{1.5}}{1 + 2.62 \times 10^{-3} v} = 5.0 \times 10^5 \frac{l(1 - 0.311 l)}{(al + b)^{1.38}} \quad (6-4.3)$$

上述の2種類のカタサのプログラムは通常、図6-4.1のように設定されていると見なすことができる。(第5章で述べた筆者の実験では、カタサを液位に比例して増大させた。)そこで(6-4.2)式に相当するカタサのプログラムが図6-4.2に示すような筆者の実験値の通りであると置き、これをもとにしてカタサ一定の場合と比較することにする。図6-4.2の筆者のプログラムは、

$$x = 33l - 13.4 \quad (6-4.4)$$

また、カタサを一定値に保つときのカタサ x_0 は $l = 1$ [cm] のときの値とする。(ただし、厳密には育晶期の開始時において $l = 1.14$ [cm] であった。)この(6-4.4)式および図6-4.2のプログラムを(6-4.3)式に代入して計算した循環速度と、カタサを一定値 x_0 に保つプログラム、(6-4.1)式、の場合の循環速度とを図6-4.3に示した。

図6-4.3に示したように、実操業条件のもとで、カタサを一定に保ちつつ煎き上げたときの循環速度は、カタサを液位とともに増大させた場合にくらべて、かなり大きいことが明らかになった。

このような循環速度の差異は結晶化操業の種々の面に影響を与える。そのうちで、結晶成長速度に与える影響を以下に考察する。すでに述べたように、結晶成長率 k_j は

$$k_j = \frac{k_s M \alpha_s}{3 \alpha_v \delta d} (z-1) \quad (4-2.17)$$

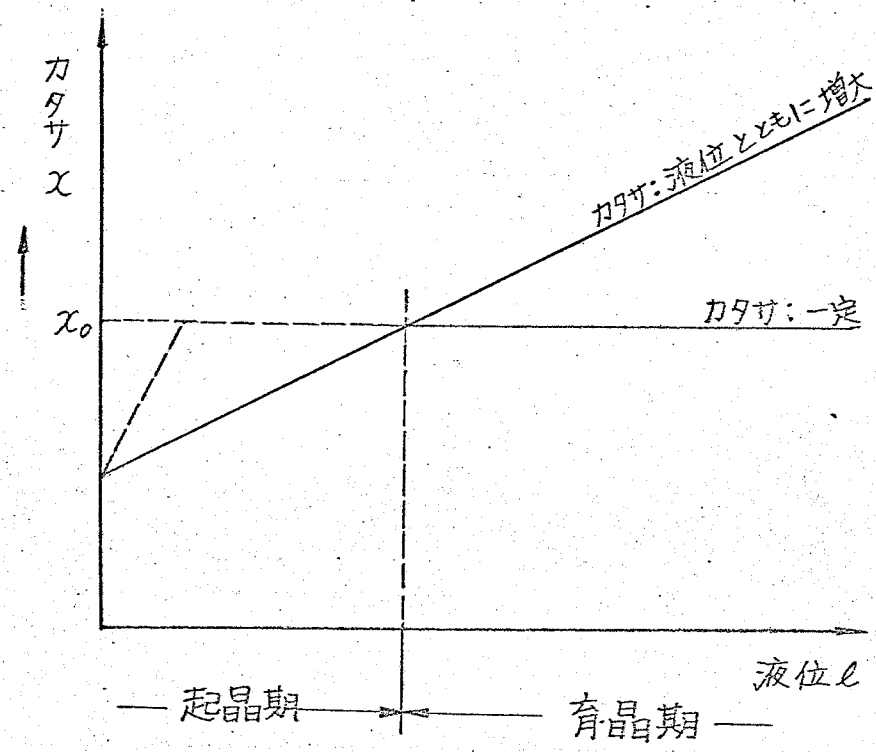
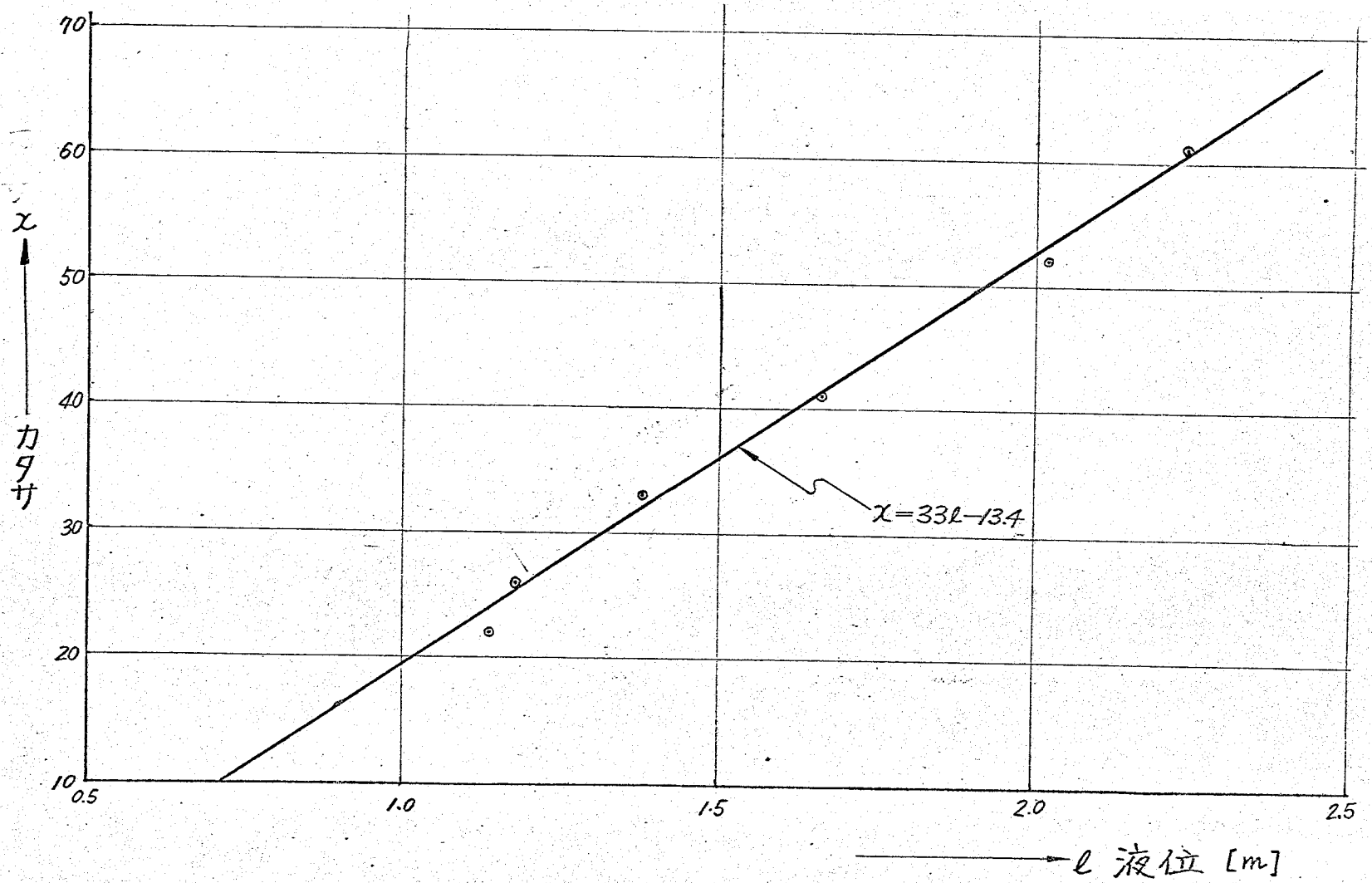
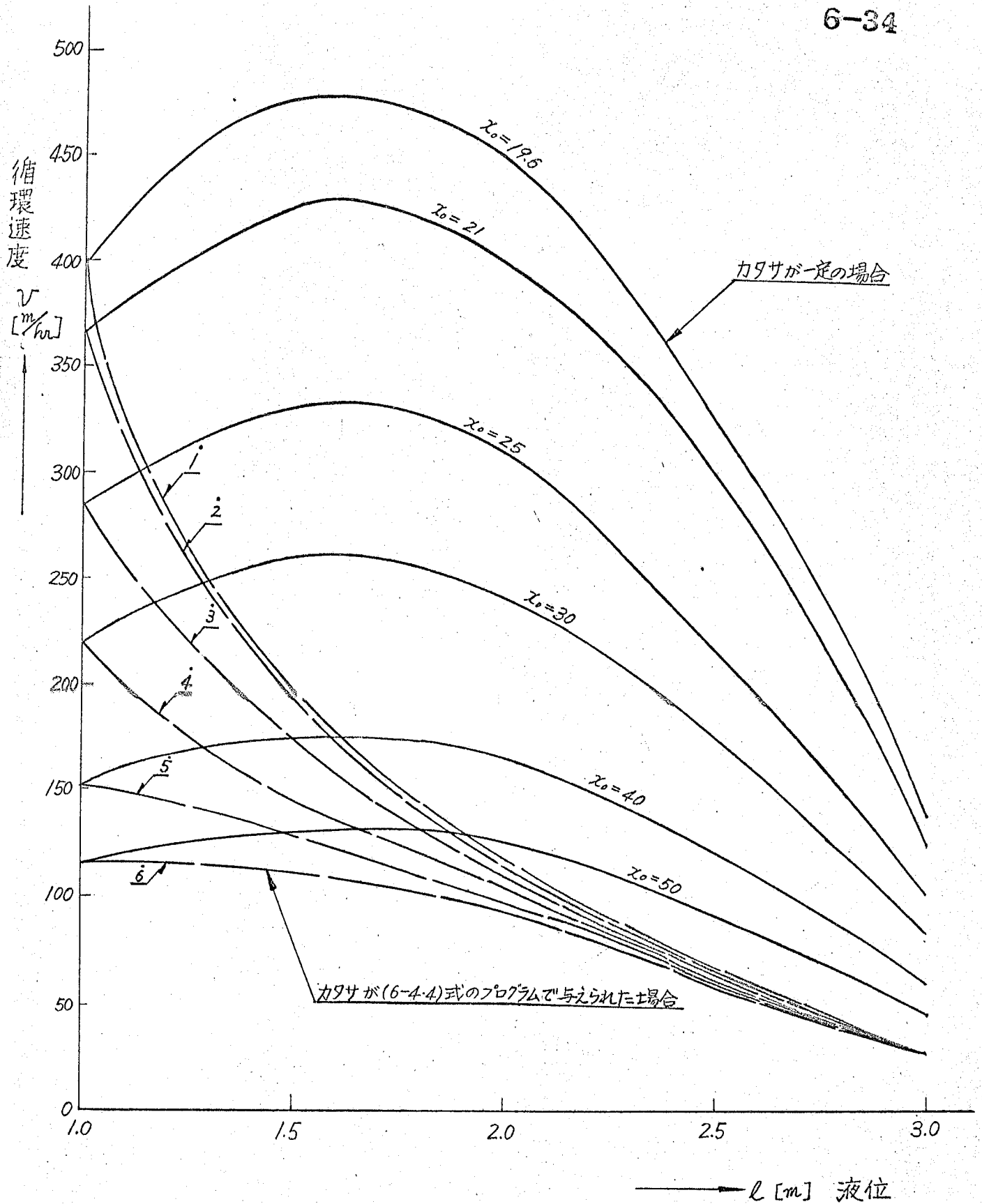


図 6-4-1 育晶期における2種類のカタサのプログラム



☒ 6-4.2 筆者の実験におけるカタサのプログラム



(図示の数字 1, 2, …, 6 は図 6-4.4 参照のこと)

図 6-4.3 循環速度の比較

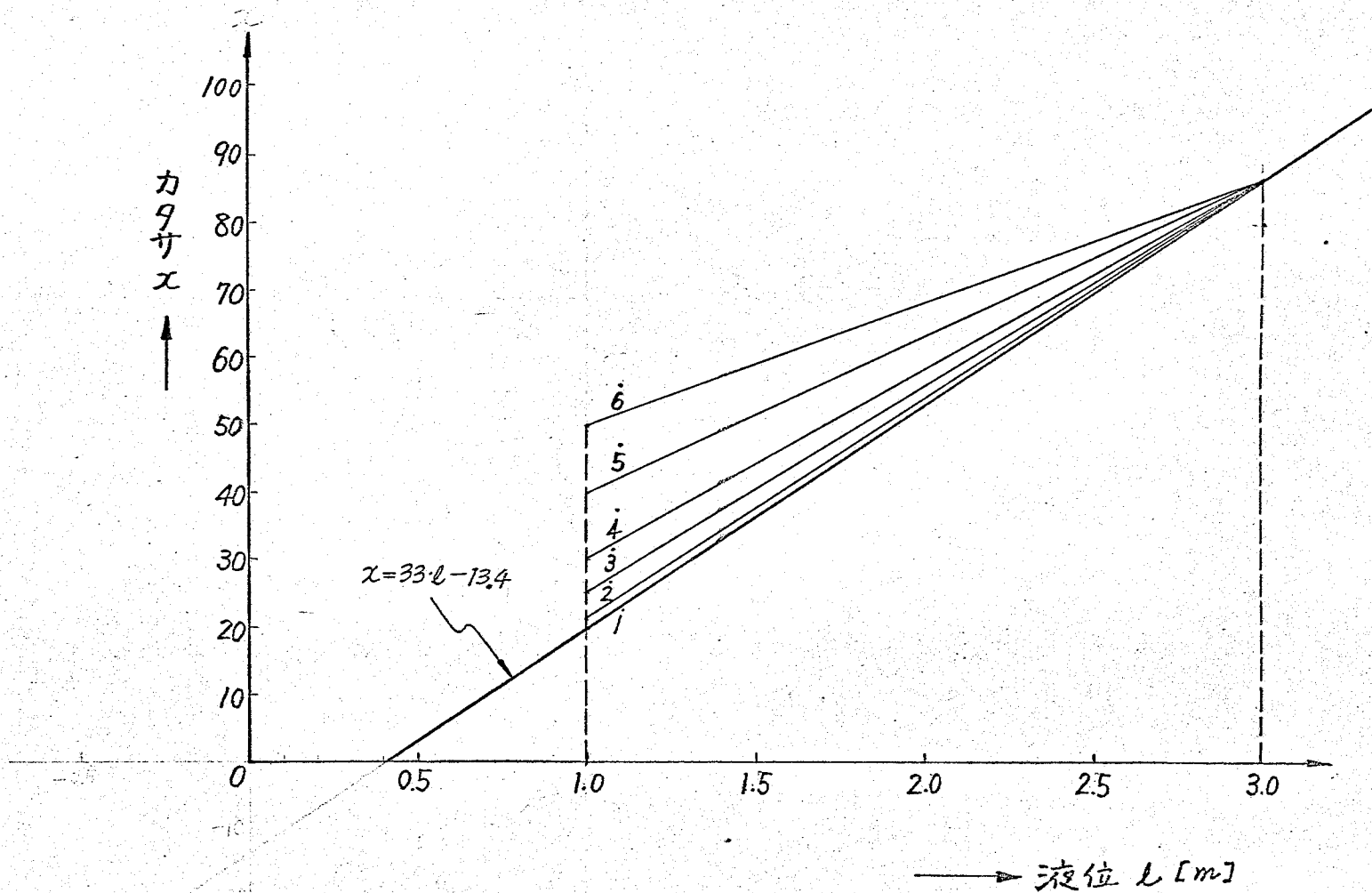


図 6-4.4 種々の力 q のプログラム

このなかで攪拌係数 M は攪拌速度すなわち循環速度 v に
 関して

$$M \propto v^\beta$$

という関係があることが分っている。ここで β は実験定
 数であるが通常 $\beta < 1$ であり、蔗糖の場合には 70°C において
 $\beta \approx 0.25$ と言われている。⁽¹⁰⁾ そこで筆者の蔗糖に関する実験
 の場合、 $\beta = 0.25$ とおくと、結晶成長率は $k_j \propto v^{0.25}$ と考え
 られる。図6-43に示した2種類のプログラムによる循環
 速度の差を約3~5倍と見積ると、結晶成長率 k_j は上述の
 関係式によつて約1.3~1.5倍になることが分る。一方、育
 晶期は回分式真空結晶缶の全回分時間の約半を占めてい
 るから、同じ粒径の結晶を得ようとする場合、この結晶
 成長率の差異によつて全回分時間の無視できない影響が
 あることが充分に考えられる。

以上のように、カタサを液位とともに増大させるプロ
 グラムは、カタサと一定に保つプログラムにくらべて、
 育晶所要時間という点では劣ることを明らかにできた。
 しかし、結晶の仕上り品質という面での検討には、さら
 にマスクットの微視的考察が要求されるのでこの章で
 は取扱わず、次章で別の角度から行なう。

要約

回転式真空結晶缶の操業において、マスクットの循環速度が重要な役割を果している点を考察し、従来の操業方法を循環特性の面から比較検討することによって、操業方法に一つの指針を与えることができた。

まず、6-1節において循環特性の重要性を考察した。筆者はこの重要性に関する従来の経験的な説を詳細に検討した結果、次の3項目が本質的に重要であることを指摘した。すなわち、マスクットの循環速度が低下することによって起る弊害は、

- ① 偽晶が発生しやすくなり、結晶粒度のばらつきが大きくなる。
- ② 結晶成長速度が低下する。
- ③ 双晶や塊晶などが発生しやすくなる。

さらにこれらの3項目はすべて、マスクット内の“むら”という概念で統一的に説明できることを見出し、表6-1.1にその詳細をまとめた。

そこで次に6-2節において循環速度を理論的に解析し、循環速度、カタサ、液位の関係式を導くことができた。(6-2.11)式。この理論式はカランドリア形の強制攪拌機をもたない回転式真空結晶缶について求めたものである。

6-3節において、さきに得た循環速度の理論式を実規模の結晶缶を用いて実験的に検討した。実験装置は第5章で示したものと同一である。実験の結果、筆者が示した理論式の妥当性が検証できた。さらに、起晶期と育晶期では缶内マスクットの循環速度に大きな差があること、またこの原因が缶内へ注入する温水と母液の差にもとづくカランドリア加熱管内での沸騰状態の違いにあることを明確に論じた。

6-4節では、従来のカタサに関する操業方法すなわちカタサのプログラムを2種類に分けて、それぞれの循

環速度を筆者の理論式によって計算し、攪拌係数と循環速度の関係式を用いて育晶所要時間の長短を論じた。その結果育晶期間を一定のカタサで操業する方法は、カタクサを液位の上昇とともに増大させる方法にくらべて、育晶所要時間をかなり短縮できる可能性のあることが立証できた。

7. 回分式真空結晶缶の自動制御系

前章までにおいて導いた回分式真空結晶缶の動特性をもとにその自動制御系を設計する。

回分式真空結晶缶のプラントとしての特徴と利用状況からみるとその自動制御系のもっとも基本となる設計思想は操業効率を高めると同時に結晶の仕上り品質を良好に保つ点にある。結晶の仕上り品質は、結晶粒の形状と粒度の揃い方(目揃い)と結晶粒子の不純物含有率(着色の程度など)とで判定されるのが常である。また操業能率には、結晶の成長速度、母液注入量、蒸気消費量などの要因がある。したがって回分式真空結晶缶の制御系を考察するに当たって、まず、結晶粒の目揃いと成長速度の観点から、塊晶や偽晶(自然起晶)の発生を抑制しつつ結晶成長速度を高めるために必要とされるカタサの制御指針を詳細に検討する必要がある。またさらに、カタサの制御に平行して母液注入量をできるだけ小さくするという観点から、カタサの最適制御系を考察しておかねばならない。(これらを7-1, 7-2節で述べる)

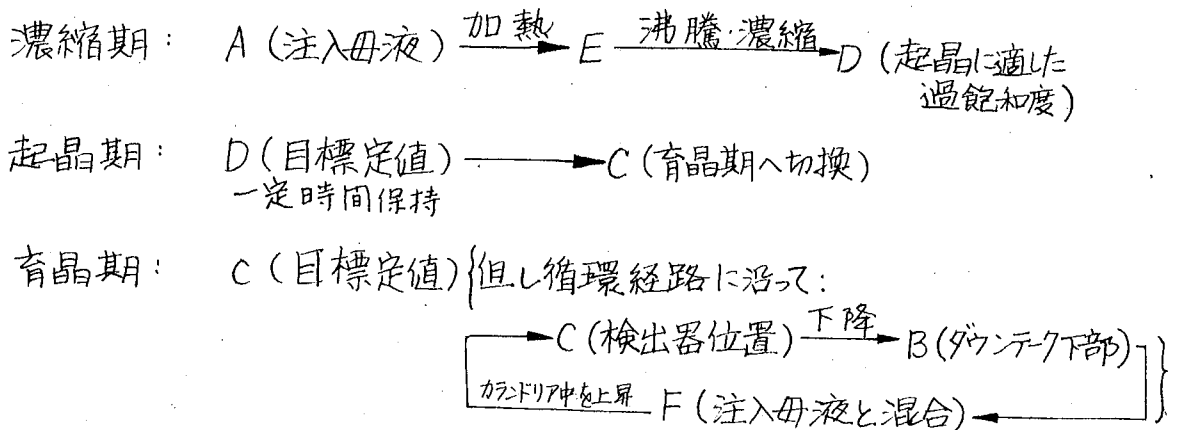
3つの制御量、すなわち缶内真空度、過飽和度、およびカタサでもって制御することは結晶の仕上り品質の面からみて次のようなメリットがあると考えられる。まず缶内真空度の制御は母液沸点の温度制御と等価であるから、この量を制御することによって、母液の変質による不純物や着色物の生成が起らない限界内の温度に缶内母液を保持することができる。また過飽和度とカタサの制御によって、母液濃度を不安定域と準安定域との中間領域に保つことができ、さらにマスクットの部分的なむらをなくすために循環流動性を確保することができるから、自然起晶を抑制し結晶成長速度を高めるメリットがある。

さて、回分式真空結晶缶の自動制御系の目標値および制御領域を明確にするため、母液の温度-濃度線図を用いて各操作期ごとに説明を加える。図7-0は、筆者が実験に供した蔗糖溶液についての温度-濃度線図で、過飽和度をパラメータとして示してある。この場合、過飽和度を通常次の3領域に分けて扱っている。すなわち、

	過飽和度 ^(*)	起晶現象
準安定域	1.0~1.2	容易に自然起晶しない。
中間域	1.2~1.5	自然起晶はごく少ないが強いショックで容易に起晶する。
不安定域	1.5以上	はげしく自然起晶する。

このような分類に従うと、濃縮期と起晶期においては、自然起晶をさけるため準安定域内で、育晶期においては操業方法によって自然起晶はほとんど防止できるから中間域で、それぞれ制御するのが適当である。したがって図7-0において、操業の許される制御範囲は、斜線を施した平行四辺形の領域になろう。ここでこの領域の右端は母液の劣化温度で定め、左端は排気凝縮器の限界(たとえば冷却水量と水温)で定まるものである。

つぎに同図で各操作期の操作線と制御目標値を示した。
すなわち、



以上の準備的考察をもとに、7-3節において自動制御系を設計した。

(*) 母液の純度、その他の条件で領域の過飽和度値が多少変わることもある。

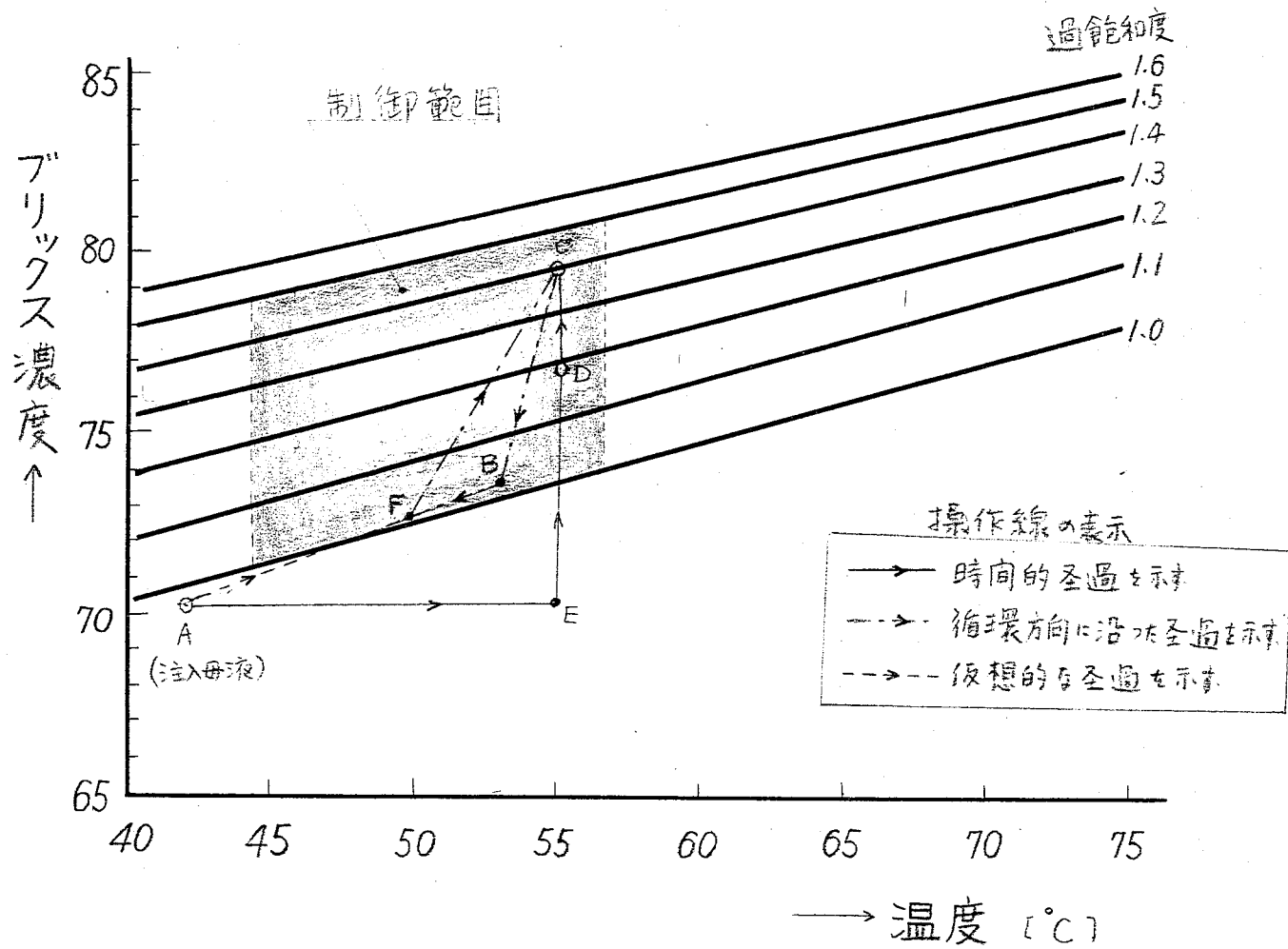


図7-0 制御範囲と操作線

$$\phi_v = \frac{v_d}{V_m} \quad (7-1.2)$$

で定義されている。カタサ \times は実際には結晶容積分率 ϕ_v だけ支配的に定まることには述べた。したがってカタサ \times のプログラムを考察するといふことは、すなわち結晶容積分率 ϕ_v のプログラムを考察するといふことと等価である。

さて、第6章において、マスケットのカタサが小さいほど、すなわち柔らかく流動性に富むほど循環速度は早くなり、また同時に伝熱係数が高くなり、その結果マスケットのむらが減りし操作時間が短縮できることを述べた。しかしカタサを小さくしようとすれば、結晶容積分率を小さくせねばならぬ。このようにすると必然的に結晶粒子間の距離は小さくなり、結晶表面まわりに存在する拡散境界層から距離、すなわち母液相が出現してくる。この状態を物理化学的にみれば、拡散境界層内の母液には常に飽和濃度(平衡点)へ向って働く自己制御性が強く作用しているが、この境界層から距離についてこの作用は急激に劣る、いわゆる自由な濃度場の状態になることは明らかである。もしこの濃度境界層から距離、すなわち母液相の濃度が充分に高く、結晶核が発生するほどの過飽和状態にあれば、当然偽晶発生の確率が高くなっていく。したがって、筆者はこの点に着目してカタサのプログラムを設定することにした。すなわち、偽晶が発生しない範囲内で結晶粒子間距離を常に最大に保たせたときのカタサが最適なカタサと与えらるると評価する。したがってこの最適プログラムに沿ってカタサを操作すれば、結晶の品質を低下させない限度内で操作能率を最大限に向し上ることが可能になることは明らかである。

上述の評価にもとづく最適なカタサのプログラムを見出すために、すなわち次項以下においてマスケット中に浮遊する結晶粒子まわりの状況を微視的に検討し、これにもとづいてさらに結晶粒子間の許容される最大の距離を求

めることとする。

(iii) マスキット中の結晶粒子の運動

マスキット中の結晶粒子まわりの濃度分布は粒子と母液との相対速度, すなわちすべり速度に關係が深いことが分っている。そこで本項では濃度分布の決定に先だてて結晶粒子の母液との相対速度について考察する。

一般に液中にある固形粒子と液との相対速度は、その粒子の浮遊速度すなわち静止液中で粒子が重力と釣合う速度の関数である。そこでまずこの時のレイノルズ数 Re の変動範囲を計算する。自然循環形の回分式結晶缶内でのマスキットの最大速度はカウンドリヤ加熱管中で起り、筆者が実験を行なったような蔗糖溶液については一般に約 $v = 3 \sim 11$ [m/min] くらいであるといわれている。(筆者の実験値によると約 6.5 [m/min] であった。) また粒子径 d は大きくてもせいぜい 0.4 [mm] くらいの大さきで、また過飽和度 1.25 、温度 60°C の蔗糖母液の物性値は粘性係数 $\mu = 2.4$ [poise]、比重 $\rho = 1.49$ [g/cc] 程度である。ゆえに考え得る最大のレイノルズ数 Re は、結晶粒子が母液と完全にすべり状態にあるというやや極端な場合と想定すれば

$$Re = \frac{v d \rho}{\mu} = \frac{6.5 \times 60 \times 0.4 \times 10^{-3} \times 1.49 \times 10^3}{2.4 \times 0.0102 \times 9.8}$$

$$\approx 0.27$$

この値はいわゆるストークス流動と呼ばれるレイノルズ数の限界すなわち $Re < 1$ の範囲内であるから、マスキット中の結晶粒子はストークス流動と見なし得ることが分った。

つぎに結晶粒子が母液中でストークス流動を行なっているときの粒子浮遊速度 v_g は周知の下式で表わすことができる。

$$v_g = \frac{r_d \cdot d^2}{18\mu}$$

たとえば粒径 $d = 0.4$ [mm] に対しての値は

$$Vg = \frac{1.49 \times 10^3 \times (0.4 \times 10^{-3})^2}{18 \times 2.4 \times 0.0102}$$

$$= 0.54 \times 10^{-3} \text{ [m/sec]}$$

粒径が 0.4 [mm] 以下については、浮遊速度はこれよりさらに小さい。

さう以上の数値例を用いて結晶粒子と母液との過渡的な相対速度

$$\frac{v_s}{v_a} = 1 - e^{-gt/vg}$$

を計算することができる。(ただし相対速度を表わす上式の左辺は母液速度 v_s と粒子速度 v_a との比であり、また右辺の g は重力加速度である。) 上式にすでに求めた値 $Vg = 0.54 \times 10^{-3}$ [m/sec] と $g = 9.8$ [m/sec²] を代入すると、相対速度は

$$\frac{v_s}{v_a} = 1 - e^{-t/0.55 \times 10^{-4}}$$

≈ 1

このように相対速度すなわち結晶粒子と母液との速度比はほとんどの瞬間的に 1 になって、結晶粒子が小さいほどますますこの傾向は強められ、事実上すべり速度は 0 と見なすことができる。

(iii) 最適な結晶粒子間距離の決定

結晶粒子まわりの微視的な濃度拡散 P を考察することによって、本節 (i) で述べた筆者の意味での最適な結晶粒子間距離を決定する。(*)

(*) 結晶成長速度と偽晶の発生を規定する因子は厳密には濃度ではなく過飽和度である。しかしここでは議論を明確にするため、マスクットや母液の温度は一定であると考へ、これによって過飽和度と濃度とを等価に扱っていく。

6
 一般に結晶の成長過程は溶質の拡散移動過程と表面晶出過程とに分けられる。前者は溶液中の溶質分が拡散により、結晶表面に到達する過程であり、後者は結晶表面に到達した溶質が結晶母体へ結晶化反応を行なう過程である。しかし、回分式真空結晶缶内のような温度(50°C以上)においては、両過程のうち拡散にもとづく抵抗が支配的になり、結晶成長速度はいわゆる拡散律速であることが分っている。(1) そこで、すべり速度が0という前項(ii)の結論を用い、以下のような拡散過程の考察を行なって結晶粒子間距離の最大限界値を定めることができることを示す。

図7-1.1に示すモデルを考える。これは、二つの結晶粒子間の両端を考慮に入れたい場合に相当している。結晶粒子間の母液濃度 C の変化は拡散方程式を基礎に次のように求めることができる。すなわち1次元の拡散方程式は

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (7-1.3)$$

(C : 母液濃度, D : 拡散係数, x : 隣接している結晶粒子の面間の距離, t : 時間)

上式の解は種々の初期値と境界条件についてすでに数多く解かれている。ここでは結晶缶の操業の実情から考えて、かなり時間が経過した時の解を求める。すなわち、初期の濃度分布が相当に複雑であっても次第に時間がたつと、濃度分布 $C(x, t)$ は正弦波状に近づく、という既知の性質をもとにして、初期条件として

$$t=0 \text{ において } C = K \sin \frac{\pi}{2\lambda} x \quad (7-1.4)$$

とおく。(K: 定数) $x=0$ 境界条件として

$$x=0, 2\lambda \text{ において } C = C_0 \quad (7-1.5)$$

とおく。ゆえに(7-1.3)式の解をなわら濃度分布として

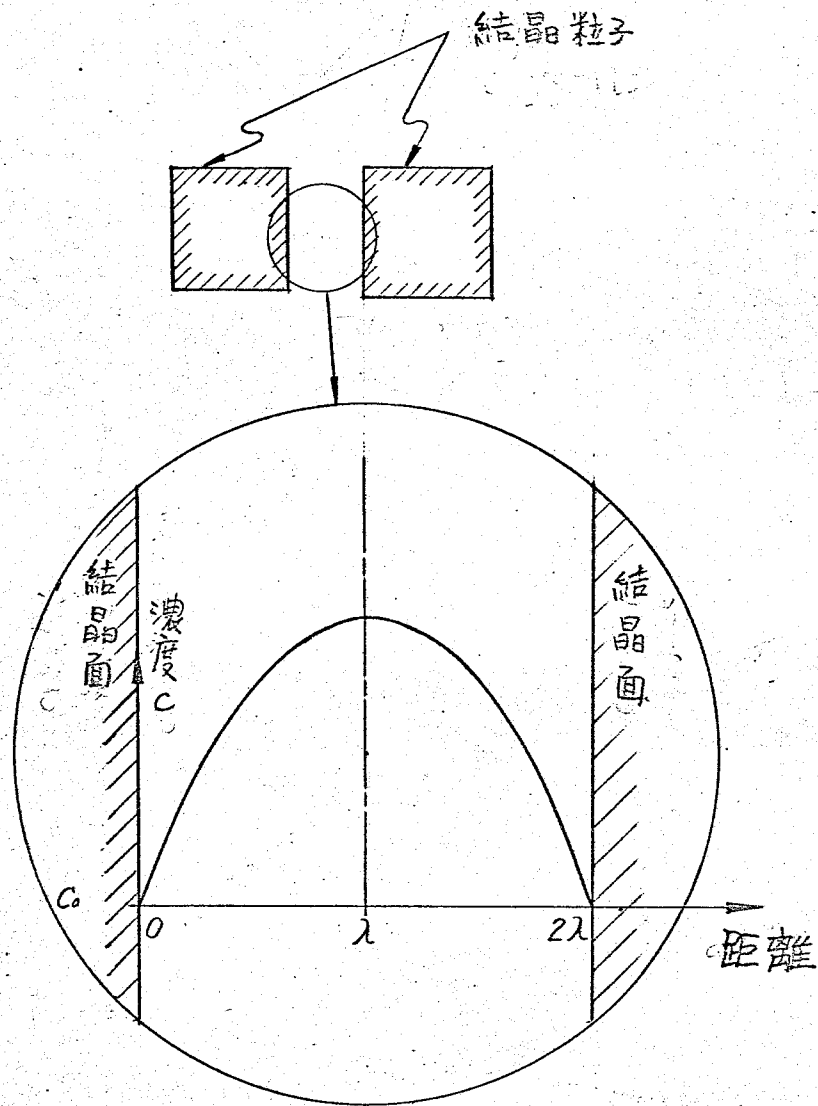


図 7-11 結晶粒子間の濃度分布

$$C = C_0 + ke^{-\frac{\pi^2 D t}{4 \lambda^2}} \sin \frac{\pi}{2 \lambda} x \quad (7-1.6)$$

が得られた。

(7-1.6)式で得た濃度分布の結晶面間距離 λ についての变化を図7-1.2に示した。ただしここでは $t = t_0$ に固定して示した。同図(右)に見られるように、結晶粒子間の距離が大きくなれば最大濃度もそれにしたがって大きくなっていく。すなわち結晶粒子間の距離がある限度以上大きくなると、図7-1.3のような偽晶発生区域を生起することが考えられる。

これまで非定常拡散過程のモデルによって検討を行ってきたが、実際の回分式真空結晶法操作では母液注入を行って濃度の制御をしているから、以下に非定常拡散過程のモデルによって検討することも必要である。このモデルを用いると図7-1.3に示した限界距離の算定も容易にできる。定常な拡散過程に対してはFickの第一法則が成立する。すなわち

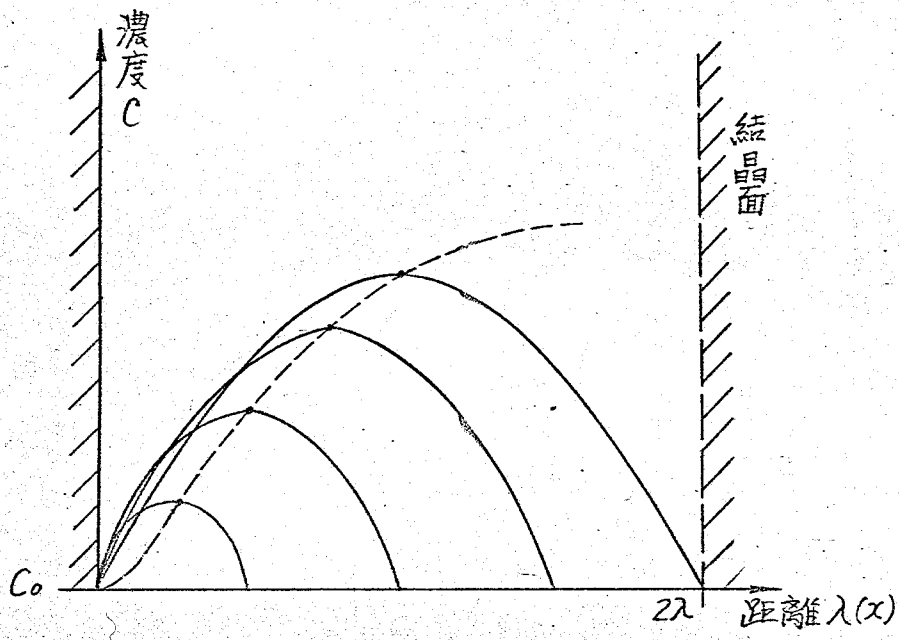
$$\begin{aligned} j_{dw} &= A \frac{D}{\delta} (C_{\infty} - C_0) \\ &= A \frac{D}{\delta} C_0 (\alpha - 1) \end{aligned} \quad (7-1.7)$$

(j_{dw} : 結晶成長速度, A : 結晶表面積, D : 拡散係数, δ : 拡散境界膜厚さ, C_{∞} : 結晶表面から充分離れた位置における濃度, C_0 : 飽和濃度, α : 過飽和度)

(7-1.7)式から、拡散境界膜の厚さ δ は

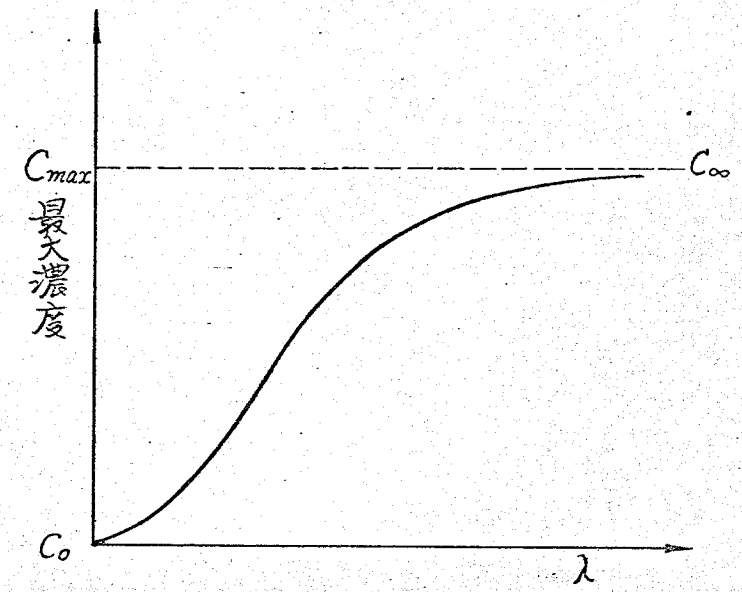
$$\delta = \frac{DC_0(\alpha - 1)}{j_{dw}/A} \quad (7-1.8)$$

この(7-1.8)式右辺の各項は色々な晶析過程について計算することができ、拡散境界膜厚さ δ はあらかじめ算出することが可能である。(7-1.7)式で表わされる定常拡散過程の濃度分布を図7-1.4に示した。すでに述べたように、育晶期における回分式真空結晶法の操作では、新しい母液の注入と濃縮の操作によりマスキット中の結晶粒



(a) 濃度分布

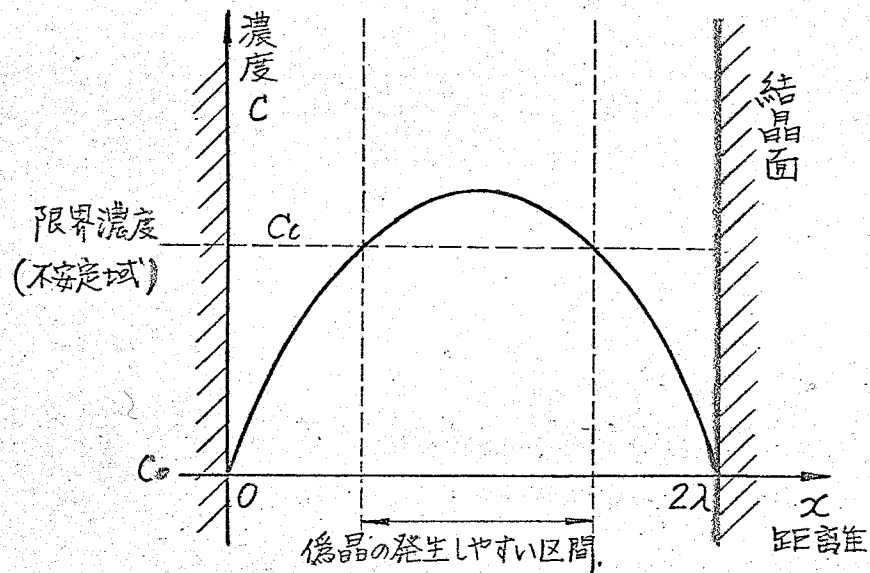
$$C = C_0 + K e^{-\frac{\pi^2 D}{4\lambda^2} t_0} \sin \frac{\pi}{2\lambda} x$$



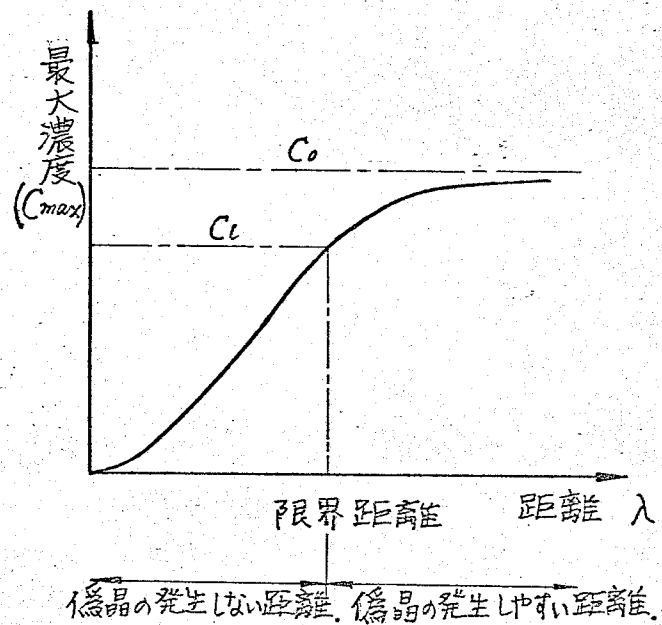
(b) 最大濃度 C_{max} と距離 λ との関係

$$C_{max} = C_0 + K e^{-\frac{\pi^2 D}{4\lambda^2} t_0}$$

図 7-1-2 結晶面間距離 λ と濃度との関係



(a)



(b)

図 7-1.3 結晶面間距離が大き過ぎて偽晶の発生しやすい場合.

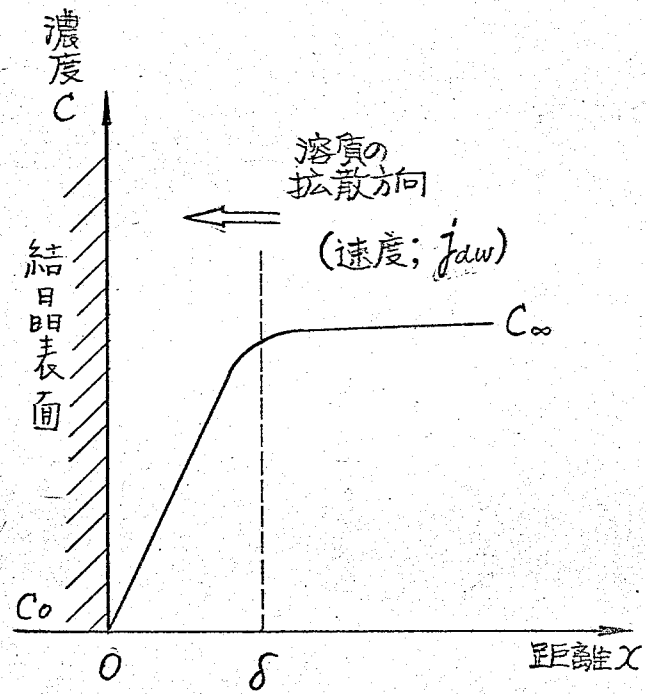


図 7-1.4 定常拡散過程

子まわりの母液は定常濃度を保っていると思わすことができる。

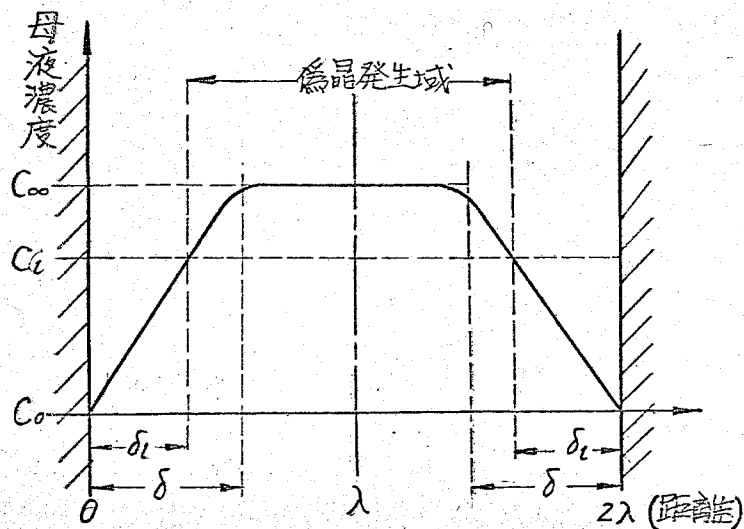
さて、2つの結晶粒子が接近したときの母液濃度分布を考え、これを図7-15に示す。同図(a)は結晶面間の距離が充分大きくて拡散境界膜が互いに接していない状態($\lambda > \delta$)を表わし、(b)はちょうど接したときの状態を示している。このような場合、境界膜外の定常濃度 C_∞ が偽晶の発生しやうい限界濃度 C_c 以上であればいずれも偽晶の発生する可能性がある。そこで図7-15(c)に示すように、さらに結晶面間を接近させて、最大濃度が限界濃度 C_c ($\lambda = \delta_c$) またはそれ以下 ($\lambda < \delta_c$) になるように保てば偽晶の発生する可能性はなくなる。

以上の考察から偽晶の発生が起らない条件として次の結論を得る(図7-15参照)。

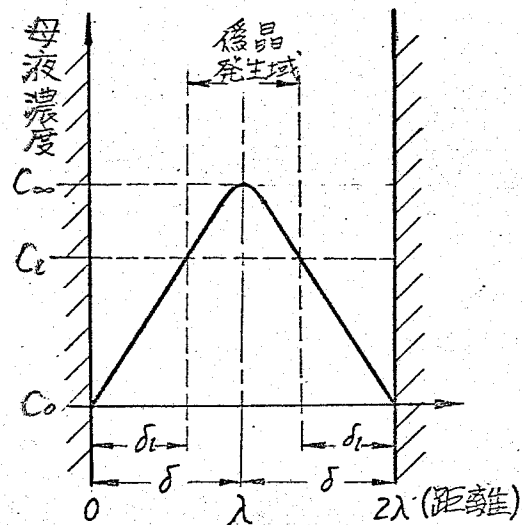
- ① $C_\infty < C_c$ のとき：偽晶発生の可能性はないから、 λ に制限はない。
- ② $C_\infty = C_c$ のとき： $\delta = \delta_c$ であるから $\lambda \leq \delta$
- ③ $C_\infty > C_c$ のとき： $\lambda \leq \delta$
(ただし、 $\delta_c = \frac{C_c - C_0}{C_\infty - C_0} \delta$)

通常の回分式結晶釜では、結晶成長速度をできるだけ大きくするため母液濃度 C_∞ を高めて操業するのが常であるから①の場合ほとんど考えられ無い。また②の場合のように濃度または過飽和度を限界値ぎりぎりの値に制御するやうな場合においても、不可避免的に③の場合に陥入ってしまう可能性が大きい。(*)ゆえに偽晶発生の可能性

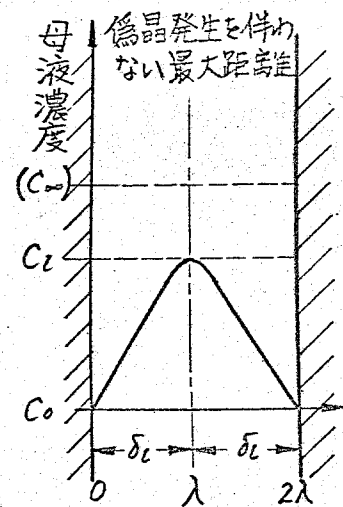
(*) とくに育晶期後半においては結晶容積分率が增大しているから、温度または過飽和度の正確な検出は原理的に困難である。また、たとえ結晶容積分率がさほど大きくない場合でも、検出器の指示は濃度拡散戸内のうすい濃度と平均化して表われてくる。したがって、③の場合に陥入る可能性は大きいと言える。



(a) $\lambda > \delta$ のとき



(b) $\lambda = \delta$ のとき



(c) $\lambda = \delta_i$ のとき

図 7-1.5 定常拡散過程のときの結晶面の濃度分布
($C_{\infty} > C_i$ のとき)

がもっとも小さいような結晶面間の最大距離は $\lambda = \delta_L$ である。すなわち、(7-1.8)式の表示をすれば、

$$\lambda = \delta_L$$

$$\frac{D(C_L - C_0)}{j_{dw}/A} = \frac{DC_0(Z_L - 1)}{j_{dw}/A} \quad (7-1.9)$$

ここで、 C_0 および Z_L は、あるマスク温度における飽和濃度および限界過飽和度である。

一例として筆者が実験を行なった蔗糖の結晶プロセスにこの結論を適用する。すなわち、70°Cの純糖液についてのデータを用いると、 $Z_L = 1.12$ 、 $C_0 = 1.057$ [g/cm³ soln]、 $D = 1.2 \times 10^{-6}$ [cm²/sec]、 $j_{dw}/A = 1.15 \times 10^{-5}$ [g/cm².sec]。ゆえに(7-1.9)式によって

$$\delta_L = \frac{1.2 \times 10^{-6} \times 1.057 \times (1.12 - 1)}{1.15 \times 10^{-5}}$$

$$= 1.32 \times 10^{-2} \quad [\text{cm}]$$

$$= 0.132 \quad [\text{m.m.}]$$

すなわち、結晶粒子の面間距離として $2\delta_L = 0.264$ [m.m.]がもっとも適当である。この数値は純糖率=100%に対する理想的な値であるから、実際業時における純糖率を考慮すれば、実際にはもう少し大きい距離で操業して差支えないものと思われる。^(*)

(IV) カタサの最適プログラムの決定

前項の結論によってマスクの結晶容積分率 α を定め、その値を(7-1.1)式に代入して最適なカタサのプログラムを決定する。

(*) G. V. Genie の経験的な煎糖法によると $\delta_L = 0.1 \sim 0.2$ [m.m.]の状態がもっとも良好な操業条件の一つであると報告されている。⁽²⁾

結晶容積分率 ϕ_v は (7-1.2) 式に示したように、結晶の総容積 V_c とマスクット総容積との比で与えられている。一方、前項の結論によると、結晶面間の最適距離 δ_c は (7-1.9) 式で示すことができる。この値 δ_c は結晶そのものの大きさに依存しない値であるから、マスクット中の結晶粒子の空間的配置さえ定めれば、おのずから最適な結晶容積分率 ϕ_v がきまってくることは明らかである。

結晶形は物質によって千差万別であり、また操業中の循環しているマスクット内での結晶粒子の配置状態は一樣に分散しているものと考えられる。そこで筆者は、通常六面体に近い結晶形が多い点に鑑みて、結晶粒子を立方体と考え、またそれらの粒子配列は、議論を簡単にするため、立方格子状であるとした。^(*) (図 7-1.6 参照)

以上のように考えると (7-1.2) 式を用いて結晶容積分率 ϕ_v は容易に求めることができる。すなわち

$$\begin{aligned}\phi_v &= \frac{V_c}{V_m} \\ &= \left(\frac{d}{d+2\lambda} \right)^3 = \left(1 + 2 \frac{\lambda}{d} \right)^{-3}\end{aligned}$$

(7-1.9) 式で求められる限界距離 δ_c を用いると、上式は

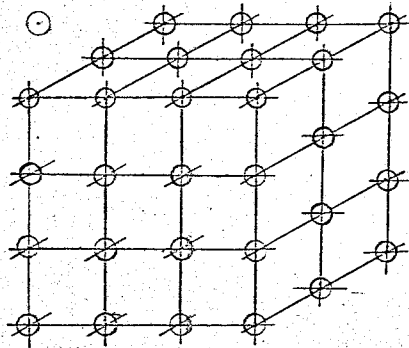
$$\phi_v = \left(1 + 2 \frac{\delta_c}{d} \right)^{-3} \quad (7-1.10)$$

ここで、粒子径 d は等価的に立方体とおいた場合の結晶粒子の一切の長さである。(7-1.10) 式を (7-1.1) 式に代入すると

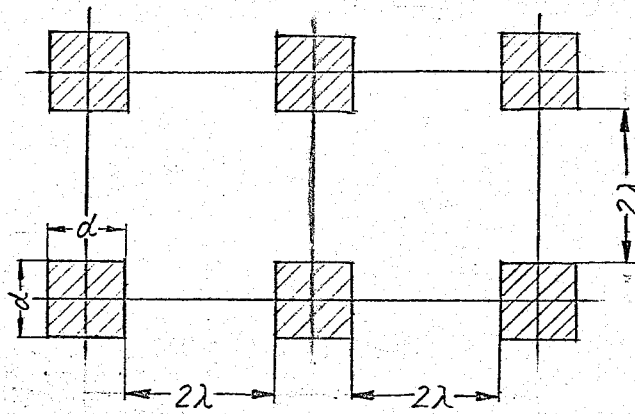
$$\alpha = \alpha_0 \left\{ 1 + \frac{k_1 \left(1 + 2 \frac{\delta_c}{d} \right)^{-3}}{1 - k_2 \left(1 + 2 \frac{\delta_c}{d} \right)^{-3}} \right\}$$

結晶粒子径 d は下に第 5 章で検証したように、時間 t

(*) もっとも一樣な分散をとる配列は菱面格子状である。しかし、結晶の形状とその配列に関する筆者のこのような仮定によっても議論の一般性は失われない。



(a) 立方格子配列



(b) 結晶の配列

図 7-1-6 モデル化した結晶の形状とその配列

に比例して成長する。

$$d = d_0 + K_j t \quad (7-1.11)$$

この式により、カタサの最適なプログラムを時間関数として求めることができるが、ここでは以下の近似を用いて求める。

まず、カタサは結晶容積分率 ϕ_v の急激な増加関数であるが、ここで問題としている育晶期間内では、 ϕ_v の変動域は比較的小さいから(第5章参照)これを図7-1.7に示すように線形化して表わしても際立った誤差は生じない。すなわち

$$\chi = \chi_0 (1 + K' \phi_v) \quad (7-1.12)$$

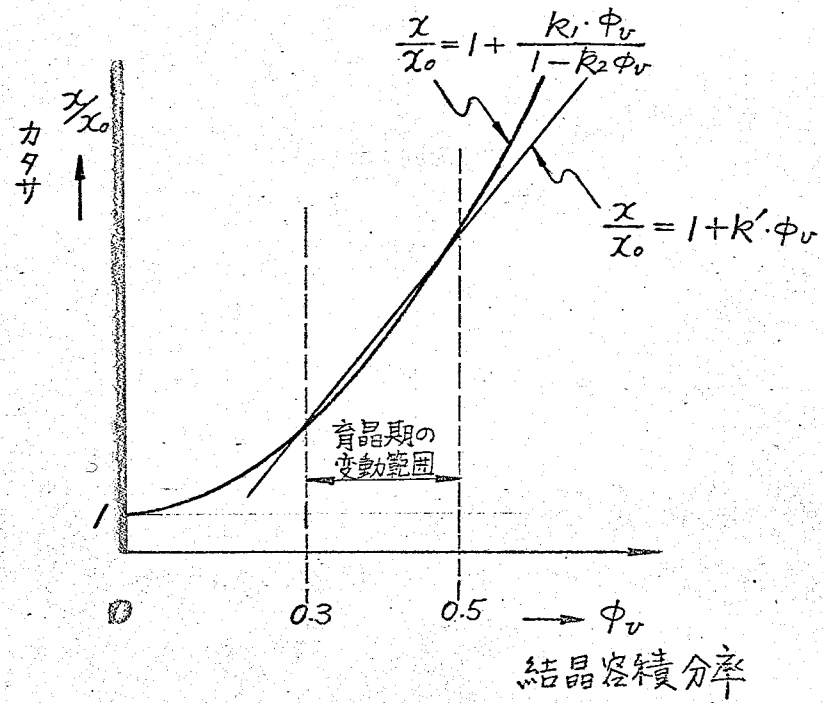
ここで χ_0 および K' は実験定数である。

(7-1.10)、(7-1.11)式を(7-1.12)式に用いれば

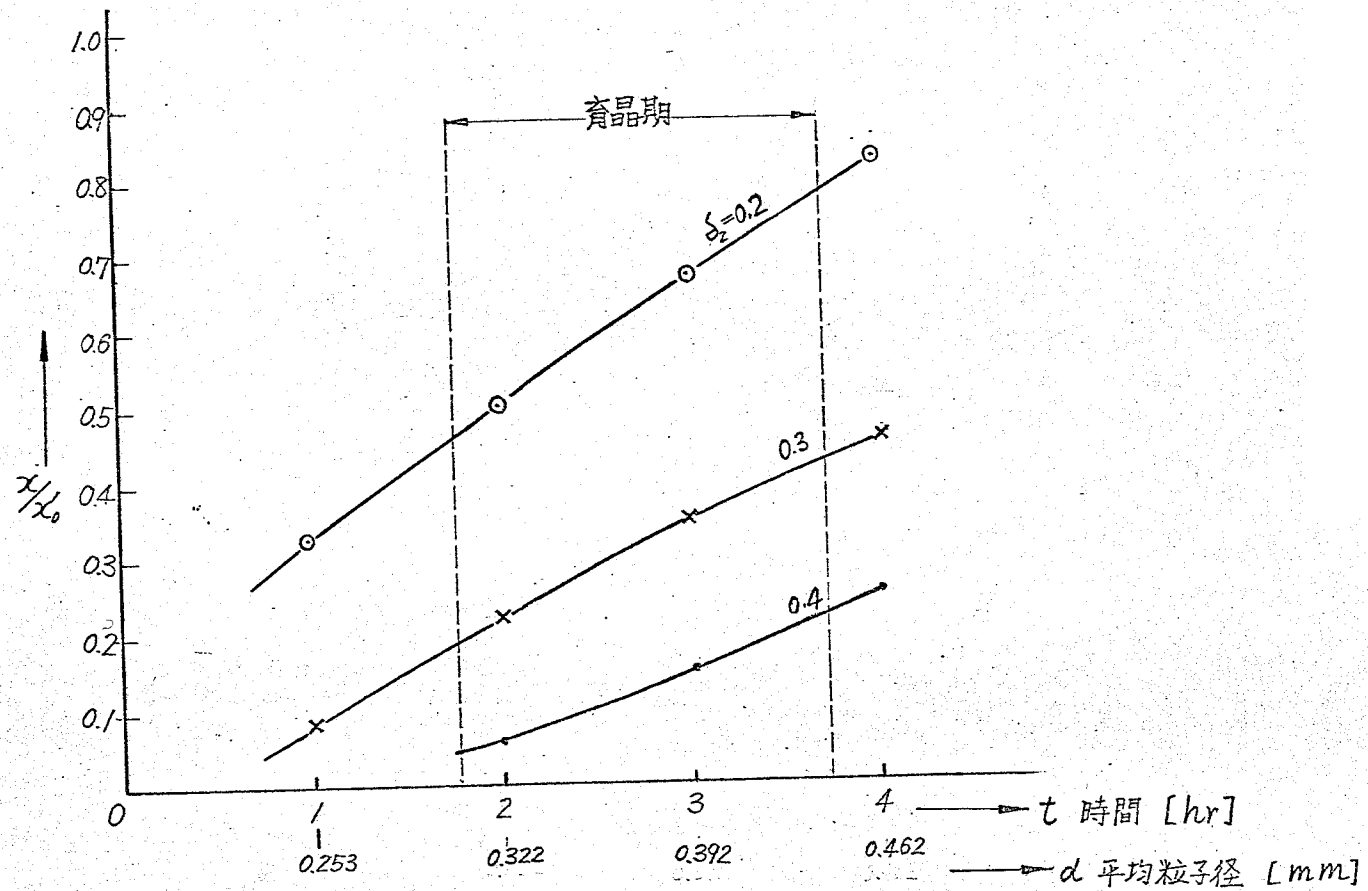
$$\begin{aligned} \chi &= \chi_0 \left\{ 1 + K' \left(1 + 2 \frac{\delta_L}{d} \right)^3 \right\} \\ &= \chi_0 \left\{ 1 + K' \left(1 + 2 \frac{\delta_L}{d_0 + K_j t} \right)^3 \right\} \end{aligned} \quad (7-1.13)$$

これが求むべきカタサの最適プログラムである。ここで結晶成長に因する係数 K_j および初期粒径 d_0 はあらかじめ与えることのできる定数である。しかし、限界結晶面間距離 δ_L は実際には母液の温度、濃度、不純物などの影響を受けやすいから、(7-1.9)式で決定された値を基準として、操業に適した実際の値を実験的に探索して定めることが望ましい。なお、(7-1.13)式における時間 t は $d = d_0$ の瞬間を起点($t = 0$)とした。

(7-1.13)式は、たとえば筆者の実験値を用いると、各種の限界距離 δ_L について図7-1.8のようなプログラム曲線を示すことが分る。育晶期間内においては、これを近似的に直線状に増大するプログラムと見なすこともできる。従来から、育晶期におけるカタサのプログラムについては種々の説が経験的に唱えられてきた。たとえば、カ



☒ 7-1.7 カタサの育晶期での線形化.



$$\text{育晶期} \begin{cases} \frac{x}{x_0} = 3\phi_v - 0.2 \\ \phi_v = (1 + 2\frac{\delta_2}{d})^{-3} \end{cases}$$

図 7-1-8 最適なカタサのプログラム (例)

夕サを常に一定に保つプログラム、S字状に増加させる
プログラム、時間に比例して増加させるプログラム、な
どがそれである。しかし、筆者の(7-1.13)式によってはじ
めて合理的なカタサのプログラムを定めることが可能に
なった。なお、従来の経験的な説のうち、時間に比例し
てカタサを増大させる方法がもっとも筆者の方法に近い
ことが明らかになった。

7-2 母液注入量と制御偏差に着目したカタサの最適制御系の理論的考察

回分式真空結晶缶の特性は図4-4.1に示したように複雑な多変数系である。また、その3つの制御量は各操作期間についてそれぞれ重要性が異なり、しかも育晶期においてはカタサが最も支配的な制御量であることをすでに指摘した。本節では、育晶期におけるカタサという重要な制御量についての最適制御問題を考察し、これを従来のプロセス制御方式の場合と比較検討する。

ここで問題とするカタサの最適性の評価として、筆者は母液注入量をできるだけ小さくする操作にまず着目した。一般に、回分式真空結晶缶の1回の操業コストには、①母液注入量、②加熱蒸気量、③冷却水量などが大きな部分を占めている。このなかで①の項がカタサの操作量に対応している^(*)。また、母液は結晶工程の主原料であるからこれを節減することは直接に生産コストを下げる利点があることは明らかである。

回分式真空結晶缶を所定の目標値とシーケンスにしたがって制御する限り、母液注入量だけを最小化する問題を考察することは意味が薄い。なぜなら、すでに述べた3つの制御量(過飽和度、缶内真空度、カタサ)がすべて各々の目標値に追従して制御されている状態であれば、本章で指摘したように、このような系にはもはや自由度が残っていないからである。したがって、母液注入量という操作量が最小化できるためにはこれと関連する他の状態量の1つを定常な拘束から解放せねばならない。そこで筆者はカタサの制御偏差をこれに当てることが妥当であると考えた。したがって最適性の評価基準を、母液注入量の項とカタサ制御偏差の項とからなる関数で表わすことにする。その結果、本節の最適制御の考察は、カタサ(制御偏差)と母液注入量(操作量)との重要度の兼ね合いを考慮した上で、制御偏差と操作量の項からなる評価関数を操作量について最小化する、という最適問題に帰着させることにした。

(1) カタサの最適制御問題

ここでは、図4-4.1に示したような複雑な多変数干渉制御系の中から、カタサの制御回路だけを取り出して考察を行う。したがって、系内の他の制御回路から印加される干渉信号は考慮しない。この制御回路の目標値は前項で述

(*) ②は過飽和度、③は缶内真空度の操作量にそれぞれ対応している。
(本章の図4-4.2参照のこと)

べた速度状の最適プログラムを用いる。また、操作量(母液注入速度)に対する制御量(カタサ)の伝達特性は $1/Ks$ とする。

さて、カタサの最適制御問題は、上述の考察にもとづいて、次式の評価関数を最小化する操作量を決定する問題に行なう。

$$J(x, y) = \int_0^T (\varepsilon^2 + \beta y^2) dt \longrightarrow \min_{\{y\}} J(x, y) \quad (7-2.1)$$

ここで ε は制御偏差、 y は操作量すなわち母液注入量であり、積分区間は回分時間 $[0, T]$ をとった。(図7-2.1参照)。また β は先に述べたように制御偏差と操作量の評価関数への寄与率をあらわす定数である。

以下に(7-2.1)式の最小化問題を動的計画法を用いて解く。まず、制御偏差 ε は、図7-2.1に示したように

$$\varepsilon = \bar{X} - x = k_p t - x$$

である。また、演算のために積分区間の下限を τ (ただし $0 \leq \tau < T$) とおき、また $x(\tau) = C$ とする。よって(7-2.1)式の最小化は次式の問題を解くことに帰する。

$$\begin{aligned} f(C, \tau) &= \min_y J(x, y) = \min_y \int_{\tau}^T F(x, y, t) dt \\ &= \min_y \int_{\tau}^T \{ (k_p t - x)^2 + \beta y^2 \} dt \end{aligned} \quad (7-2.2)$$

上式はつぎのように解析的に解くことができる。まず、積分区間 $[\tau, T]$ を $[\tau, \xi]$ と $[\xi, T]$ に分けて、上式に最適性の原理⁽³⁾を適用すれば

$$f(C, \tau) = \min_y \left[\int_{\tau}^{\xi} F(x, y, t) dt + f \{ C(\xi), \xi \} \right]$$

ここで $\xi \rightarrow \tau$ とし、 $y(\tau) \equiv v$ とおけば

$$0 = \min_v \left[F(C, v, \tau) + \frac{\partial f}{\partial \tau} + \frac{dC}{d\tau} \frac{\partial f}{\partial C} \right] \quad (7-2.3)$$

制御対象は積分性であるから、 $t = \tau$ における伝達特性は

$$\frac{dC}{d\tau} = \frac{v}{K} \quad (7-2.4)$$

ここで $1/K$ は積分ゲインである。また $F(C, v, \tau) = (k_p \tau - C)^2 + \beta v^2$ である。ゆえに(7-2.3)式は

$$0 = \min_v \left[(k_p \tau - C)^2 + \beta v^2 + \frac{\partial f}{\partial \tau} + \frac{v}{K} \frac{\partial f}{\partial C} \right] \quad (7-2.5)$$

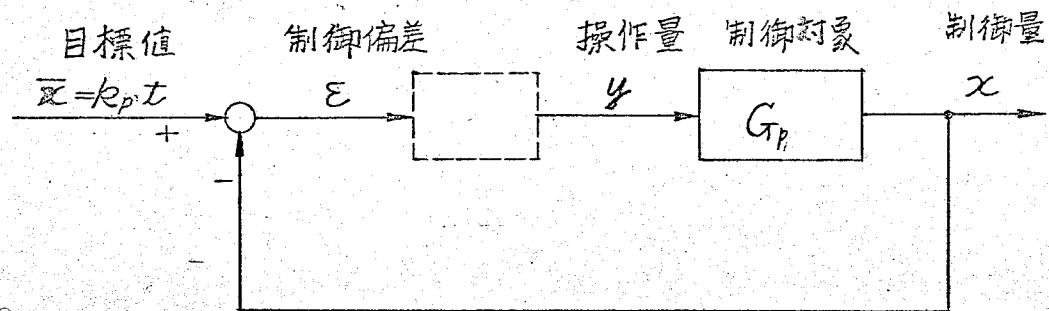


図 7-2.1 簡単化したカサの制御系

右辺の極値を求めるため、上式の括弧内を v について微分し、0 とおけば

$$v = - \frac{1}{2\beta K} \frac{\partial f}{\partial c} \quad (7-2.6)$$

したがって最適操作量 v は、 $(\partial f / \partial c)$ の項が求まれば決定できる。そこで (7-2.5) 式と (7-2.6) 式から v を消去すると

$$(k_p T - c)^2 + \frac{\partial f}{\partial c} - \frac{1}{4\beta K} \left(\frac{\partial f}{\partial c} \right)^2 = 0 \quad (7-2.7)$$

この偏微分方程式の解 f は、次式のような c に関する二次式で十分に表現できることが変分法ですでに分っている。

$$f(c, T) = k_1(T) - k_2(T)c + k_3(T)c^2 \quad (7-2.8)$$

この (7-2.8) 式を用いて (7-2.7) 式の各項を導き、これによって得られる恒等式から次式の最適操作量 v を求めることができる。(附録 7-1 参照のこと)

$$v = \frac{1}{\sqrt{\beta}} \tanh\left(\frac{T-T}{\sqrt{\beta}K}\right) \cdot (k_p T - c) + k_p K \left\{ 1 - \operatorname{sech}\left(\frac{T-T}{\sqrt{\beta}K}\right) \right\}$$

上式は $T \in [0, T]$ について一般的に成立する関係式であるから、 v, c, T をそれぞれ y, x, t に置き換えることができる。ゆえに求むべき最適操作量 y は

$$y = \frac{k_p T - x}{\sqrt{\beta}} \tanh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) + k_p K \left\{ 1 - \operatorname{sech}\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) \right\} \quad (7-2.9)$$

この最適操作量 (7-2.9) 式は 2 項から成り立っている。その一つは、右辺才 1 項で示したように、偏差 $\varepsilon = k_p T - x$ に関する可変比例項であり、他の一つは右辺才 2 項の偏差に關係しない可変項である。このことを一般のフィードバック制御系と関連付けて考えると (図 7-2.2 参照)、前者はフィードバックループの調節部に相当する伝達特性を表わしているが、後者は目標値から加え念わせ点を通らずに直接制御対象へ加わる開回路助可変操作量を示している。この後者の項は目標値をプログラムで与えたことに起因するものであることが以下の比較によって分る。すなわち、ここで筆者が設定した評価関数 (7-2.1) 式、と制御対象の伝達関数 (7-2.4) 式はそれぞれそのまゝ同じであるが、目標値は一定 (\bar{x}_0) である、という場合の最適操作量 y は、上と同じ手法を用いて解くと、

$$y = \frac{\bar{x}_0 - x}{\sqrt{\beta}} \tanh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) \quad (7-2.10)$$

であることがすでに解かれている。⁽⁴⁾ この (7-2.10) 式の結果を筆者の結果 (7-2.9) 式と比較すれば、その差異は (7-2.9) 式才 2 項にあり、これは明らかに目標

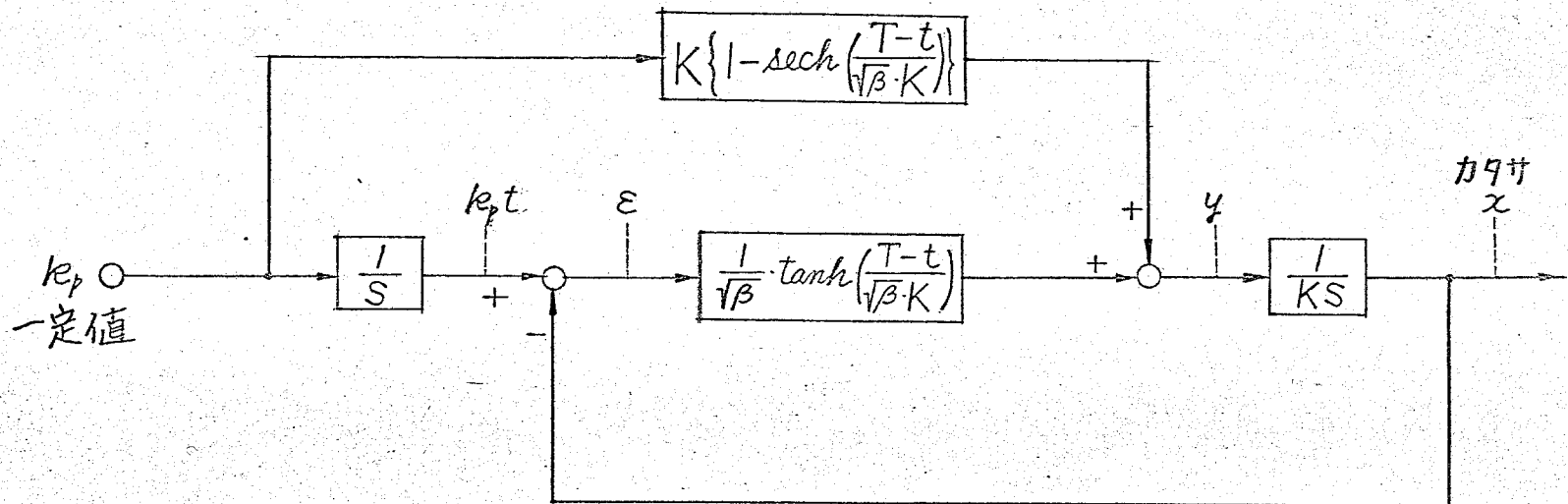


図 7-2-2 (7-2-4) 式の最適操作量にもとづく制御系の構成

値を定値でよくプログラムで与えたことに起因する項であると結論できる。

つぎに、(7-2.9)式に示した最適操作量を施したときの制御量 x と偏差 ε を導く。まず、制御量 x と操作量 y との関係は、制御対象の伝達特性により

$$\frac{dx}{dt} = \frac{y}{K} \quad (7-2.11)$$

よって(7-2.11)式と(7-2.9)式より

$$\frac{dx}{dt} + \frac{1}{\sqrt{\beta}K} \tanh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) \cdot x = \frac{1}{\sqrt{\beta}K} \tanh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) \cdot k_p t + k_p \left\{1 - \operatorname{sech}\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right)\right\}$$

この微分方程式を初期値 $x(0) = 0$ の下で解くと

$$x = k_p \left[t - \sqrt{\beta}K \left\{ \tanh\left(\frac{T}{\sqrt{\beta}K}\right) \cdot \cosh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) - \sinh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) \right\} \right] \quad (7-2.12)$$

これが制御量の最適制御量である。つぎに偏差 ε は、 $\varepsilon = k_p t - x$ であるから

$$\varepsilon = k_p \sqrt{\beta}K \left\{ \tanh\left(\frac{T}{\sqrt{\beta}K}\right) \cdot \cosh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) - \sinh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) \right\} \quad (7-2.13)$$

次項において以上のように求めた最適制御系の応答を従来のプロセス調節器による制御系の応答と比較対照し、その吟味し、その得失を検討する。

(ii) 従来のプロセス制御系との比較検討

すでに各方面で指摘されているように、前項で求めた最適制御系は(7-2.1)式で示した評価関数についてはほぼ最適の応答を示すものであるが、従来のいわゆるフィードバック制御系のように、予知できない外乱や特性変動に動的に対応でき難いことがすでに指摘されている。⁽⁵⁾ 本項ではこの問題点とは別の立場から、今まで比較的検討されていなかった本題のような最適プログラム制御系を、具体的に従来のフィードバック制御系と比較し、その両者の得失の検討を行ない、いかなる場合にこの最適制御系がもっとも効果的であるかを考察する。

まず前項で得た最適制御系の二、三の特性を吟味して列記する。

① 偏差 ε は、(7-2.13)式により

$$t = 0 \text{ において } \varepsilon = 0$$

$$0 < t \leq T \text{ において}$$

$$\frac{d\varepsilon}{dt} = k_p \left\{ \tanh\left(\frac{T}{\sqrt{\beta}K}\right) \sinh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) + \cosh\left(\frac{T-t}{\sqrt{\beta}K}\right) \right\} > 0$$

であるから、偏差は常に非負で、しかも時間とともに単調増加している。すなわち

この最適制御系の応答は行き過ぎ(オーバシュート)をしないが、制御偏差は徐々に大きくなってゆくことが分る。

② 制御偏差の最終値 $\varepsilon(t=T)$ は

$$\varepsilon_{t=T} = \tau_p \sqrt{\beta} K \tanh\left(\frac{T}{\sqrt{\beta} K}\right) \quad (7-2.14)$$

β の値が小さいほどこの最終値は小さくなる。換言すれば、評価関数のなかで母液量操作面積^(*)の重みづけを大きくすると(すなわち $\beta \rightarrow$ 大)必然的に制御偏差が大きくなることを意味している。

③ 制御対象の積分ゲイン ($1/K$) が大きいとき、最適操作量 y は近似的に次式のようになる。

$$y \approx \frac{1}{\sqrt{\beta}} (\tau_p t - x) \quad (7-2.15)$$

この関係は比例動作に相当している。すなわち最適操作量 y は本質的に比例動作を含んでいることを示している。また、上述②の場合と同様に、母液量(操作面積)の重みづけを大きくすると(すなわち $\beta \rightarrow$ 大)、(7-2.15)式の比例ゲイン ($1/\sqrt{\beta}$) は逆に小さくなり、したがってこのような場合に制御偏差が大きくなることを再び示している。

④ 評価関数の操作面積に関する重み β の値によって、最適操作量 y は次のような特性の傾向を示している。まず $\beta \rightarrow 0$ すなわち評価関数として自費制御面積 $\int \varepsilon^2 dt$ だけを最小にする場合の最適操作量 y は $y \rightarrow \infty \cdot \varepsilon$ となる。これは比例ゲインを無限大に大きくする比例動作に相当するから、制御系の回路理論から考えて妥当である。つぎに、 $\beta \rightarrow \infty$ すなわち制御偏差には何ら関心を向けずにただ操作面積(母液量)だけを最小化するという矛盾を含んだ場合を想定すれば、このときの最適操作量 y は $y \rightarrow 0$ となり予期したように全く無意味な操作を示している。

さて、目標値が速度状プログラムで与えられ、制御対象が積分性の場合、従来のプロセス制御系の設計法では調節器として比例動作もしくは比例-

(*) 評価関数(7-2.1)式を書直して、 $J(x, y) = \int_0^T \varepsilon^2 dt + \beta \int_0^T y^2 dt$ 。右辺第一項は(自費)制御面積であり、第二項の積分値は操作面積と名付ける。カタサの制御系においては、操作面積は母液(所要)量に相当する。

積分動作をもつ調節器を用いるのが適当である。^(*) ここで前項で得た最適制御系の応答を比較検討する制御系として、筆者はこれらの調節器、P-調節器およびPI-調節器を用いた制御系を考へることとする。このようにして採択した制御系を、①最適制御系、②P-制御系、③PI-制御系と名付ける。つぎにこれらを比較する量は、最適制御系の評価関数の評価因子すなわち制御偏差 ε と操作量 y がもっとも有意であり適切である。各制御系のこれらの値に添字1, 2, 3を附して表わすこととする。(すなわち $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3$ および y_1, y_2, y_3)

図7-2-3にP-制御系およびPI-制御系のブロック線図を示す。ここで比例調節器および比例積分調節器の伝達関数 G_p を

$$\text{比例調節器: } G_p = K_{p2} \quad (7-2-16)$$

$$\text{比例積分調節器: } G_p = K_{p3} \left(1 + \frac{1}{T_I S} \right) \quad (7-2-17)$$

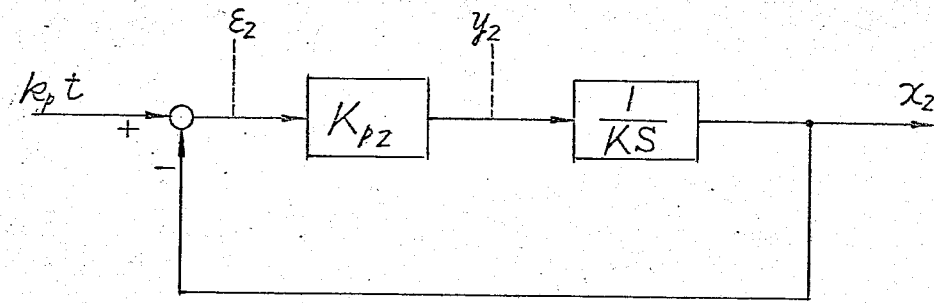
(K_{p2}, K_{p3} : 比例ゲイン, T_I : 積分時間) なお、最適制御系のブロック線図はすでに図7-2-2で示した。

これらの3種類の異なる見地から構成した制御系の応答をそのまゝ一般的に比較することは困難であり、またそのような比較の方法はあまり有意義とは思えない。そこで、ここではプロセス制御の常套的⁽⁶⁾最適調整基準を用い、パラメータの選定を行なった上で比較検討することにした。すなわち、これらの3種類の制御系についての調整基準⁽⁶⁾として①最大偏差(行き過ぎ量を含む)は±0.1すなわち10%を越えはしないこと、②偏差が振動性の応答を示すときはいわゆる25%減衰の条件を満たすこととする。またさらに便宜上次の数値を用いる。すなわち、①プログラム目標値の勾配を $\rho = 1$ 、②回分時間 $T = 1$ 、したがって $0 \leq t \leq 1$ とする。^(**)

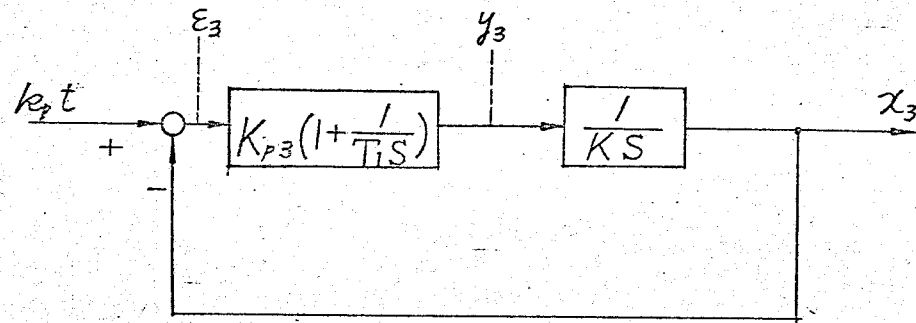
まず、最適制御系について上述の調整条件をあてはめる。すなわち、制御偏差 ε は(7-2-13)式で示したような単調増加関数であるから、最大偏差は $t = 1$ で生起する。ゆえに

(*) 微分動作を含む調節器を適用するに際しては応答時間は短くなるが行き過ぎ量(オーバーシュート)が大きくなり、しかも応答の減衰率が低下する傾向がある。このような制御系の応答は概してプロセス制御の場合に弊害を伴うことが多い。したがってPD-, PID-調節器はここでは考慮しなかった。

(**) 回分時間の長短に関してはあとでさらに吟味を行なう。



(a) P-制御系



(b) PI-制御系

図 7-2.3 最適制御系と比較する制御系の
ブロック線図

$$\varepsilon_1|_{t=1} = \sqrt{\beta} K \tanh\left(\frac{1}{\sqrt{\beta} K}\right) \leq 0.1$$

$$\therefore \sqrt{\beta} K \leq 0.1 \quad (7-2.18)$$

そこで、 $\sqrt{\beta} K = 0.1$ とおくと偏差 ε_1 は

$$\begin{aligned} \varepsilon_1 &= 0.1 \left\{ \tanh(10) \cosh 10(1-t) - \sinh 10(1-t) \right\} \\ &= 0.1 e^{-10(1-t)} \end{aligned} \quad (7-2.19)$$

このときの操作量 y_1 は上式を (7-2.9) 式に用いて

$$y_1 = K \left\{ 1 - e^{-10(1-t)} \right\} \quad (7-2.20)$$

つまり、図 7-2.3 (a) に示した P-制御系について、制御偏差 ε_2 はやはり単調増加関数であるから、最大偏差は $t=1$ で生起する。ゆえに

$$\varepsilon_2|_{t=1} = \frac{K}{K_{p2}} (1 - e^{-\frac{K_{p2}}{K}}) \leq 0.1$$

$$\therefore K_{p2} \geq 10K$$

そこで、 $K_{p2} = 10K$ とおくと、偏差 ε_2 は

$$\varepsilon_2 = 0.1 (1 - e^{-10t}) \quad (7-2.21)$$

これに対する操作量 y_2 は

$$y_2 = K (1 - e^{-10t}) \quad (7-2.22)$$

図 7-2.3 (b) に示した PI-制御系については、制御偏差 ε_3 は

$$\varepsilon_3 = \frac{1}{\frac{K_{p3}}{2K} \sqrt{\frac{4K}{K_{p3}T_I}} - 1} \cdot e^{-\frac{K_{p3}}{2K} t} \cdot \sin \left\{ \frac{K_{p3}}{2K} \sqrt{\frac{4K}{K_{p3}T_I}} - 1 \cdot t \right\}$$

ただし、ここで $4K > K_{p3}T_I$ とする。制御偏差の最大値は行き過ぎ時刻において生起するから

$$\varepsilon_3|_{\max} = \frac{1}{\frac{K_{p3}}{2K} \sqrt{\frac{4K}{K_{p3}T_I}} - 1} \cdot e^{-\frac{\pi}{2\sqrt{\frac{4K}{K_{p3}T_I}} - 1}}$$

また減衰率 λ は

$$\lambda = e^{-\frac{2\pi}{\sqrt{\frac{4K}{K_{p3}T_I}} - 1}}$$

ゆえに、最大偏差条件 $\varepsilon_3|_{\max} \leq 0.1$ および 25% 減衰条件 $\lambda = 0.25$ という 2 つの調整条件から調節器のパラメータ K_{p3} , T_I を算出すると

$$K_{p3} = 3.13K, \quad T_I = 0.0594$$

ゆえに PI-制御系の制御偏差 ε_3 および操作量 y_3 は

$$\varepsilon_3 = 0.141 e^{-1.57t} \sin(7.08t) \quad (7-2.23)$$

$$y_3 = K \{1 + 8.8 e^{-1.57t} \sin(7.08t + 1.79)\} \quad (7-2.24)$$

以上で、すでに指定した調整基準にもとづき、比較すべき各制御系の調節器パラメータおよびそれに応じた制御偏差および操作量の時間的変化が求まった。

さて、このように定めた3種類の制御系について、その制御偏差 $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3$ および操作量 y_1, y_2, y_3 をそれぞれ比較する。制御偏差は、(7-2.19), (7-2.21), (7-2.23)式に見られるように、制御対象のパラメータ K を含んでいない。図7-2.4に各制御偏差を図示した。この図から明らかのように、最適制御系の制御偏差 ε_1 は $t=0 \sim 0.6$ の間ではほとんど0であるが、それ以後は急激に増加して許容した最大偏差に至っている。これに対してP-制御系は予期されたように比較的早くから制御偏差 ε_2 が増加しつづけ、 $t=0.5$ 以後はオフセットを残存するこゝろが分る。PI-制御系の制御偏差 ε_3 は減衰振動状で、P-制御系にくらべて偏差はかゝり小さい、という制御系としての特長が見られる。つぎに、一般的に制御性の尺度と考えられている制御面積すなわち $\int_0^T \varepsilon^2 dt$ の値は、計算するまでもなく、最適制御系のそれがもっとも小さく、P-制御系のそれがもっとも大きい。この意味では最適制御系がもっとも制御効果が大きい、と言える。

評価のもう一つの基準としての操作量は、(7-2.20), (7-2.22), (7-2.24)式に示したように、すべて制御対象のパラメータ K を含んでいる。ここで注意すべき点は、最適制御系においては、(7-2.18)式で示したように、重み係数 β がこのパラメータ K の値により制約されていることである。すなわち制御偏差に関してすでに述べた最大許容の制限を附与すると、重み係数 β は任意に定めることができなくなるこゝろが分る。したがって、制御対象のゲイン定数が十分に高い場合に限って、評価関数のほかの操作量に関する評価の割合を高めることができるこゝろが明らかになった。各種の K の値に対する β の値を表7-2.1に示す。図7-2.5は各制御系の操作量に関する比較図である。

さて以上で求めた3種類の制御系に関する制御偏差および操作量を適用して評価関数の値を具体的に算出し比較する。すなわち、まず(7-2.1)式で定義した評価関数

$$J = \int_0^T (\varepsilon^2 + \beta y^2) dt$$

の値を $(\varepsilon_1, y_1), (\varepsilon_2, y_2), (\varepsilon_3, y_3)$ の各組について $[0, 1]$ の区間で積分

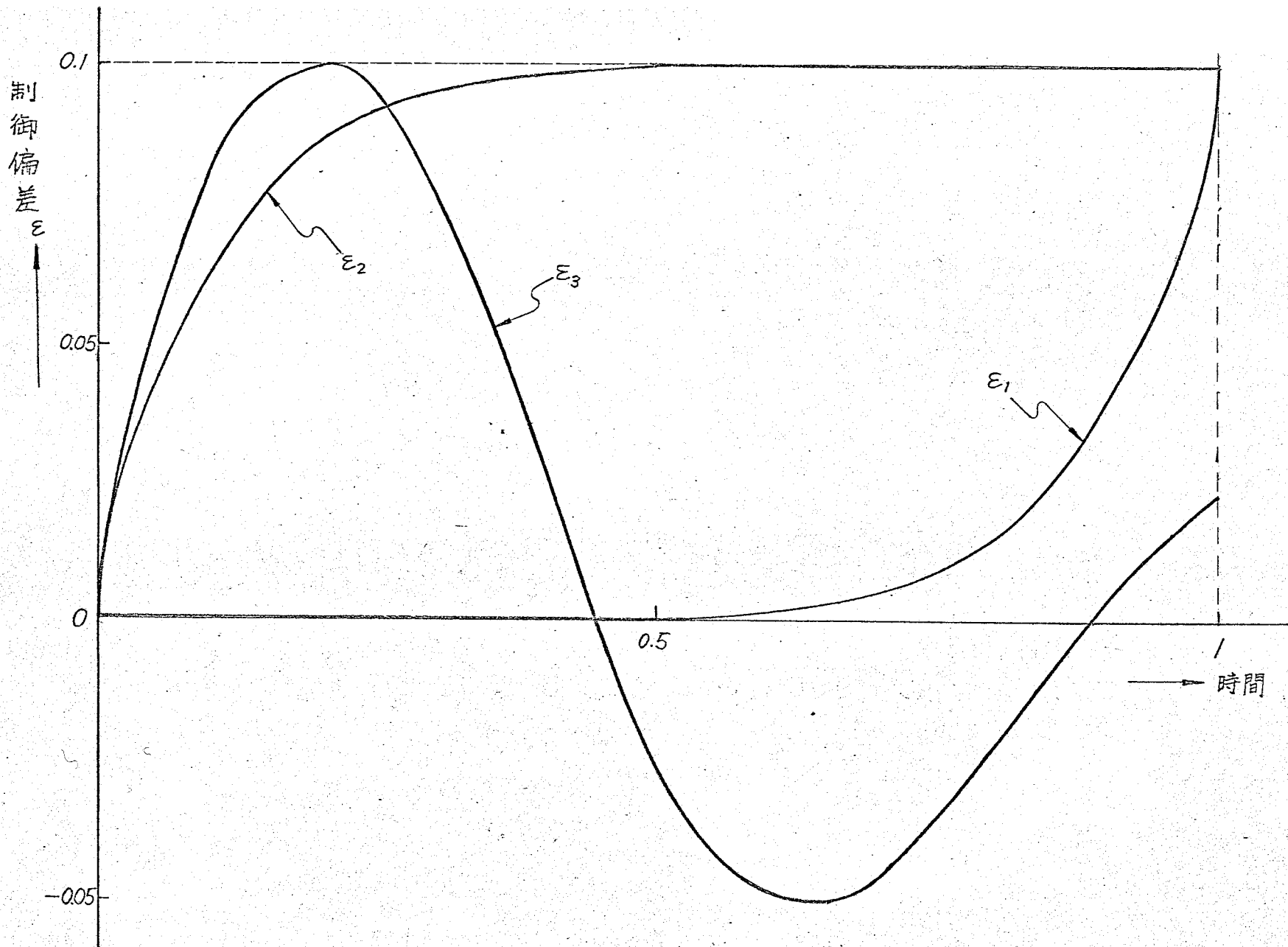


図 7-2-4 各制御偏差の比較

表 7-2.1 K と β との対応

K	β
1	0.01
0.5	0.04
0.1	1
0.05	4
0.01	100

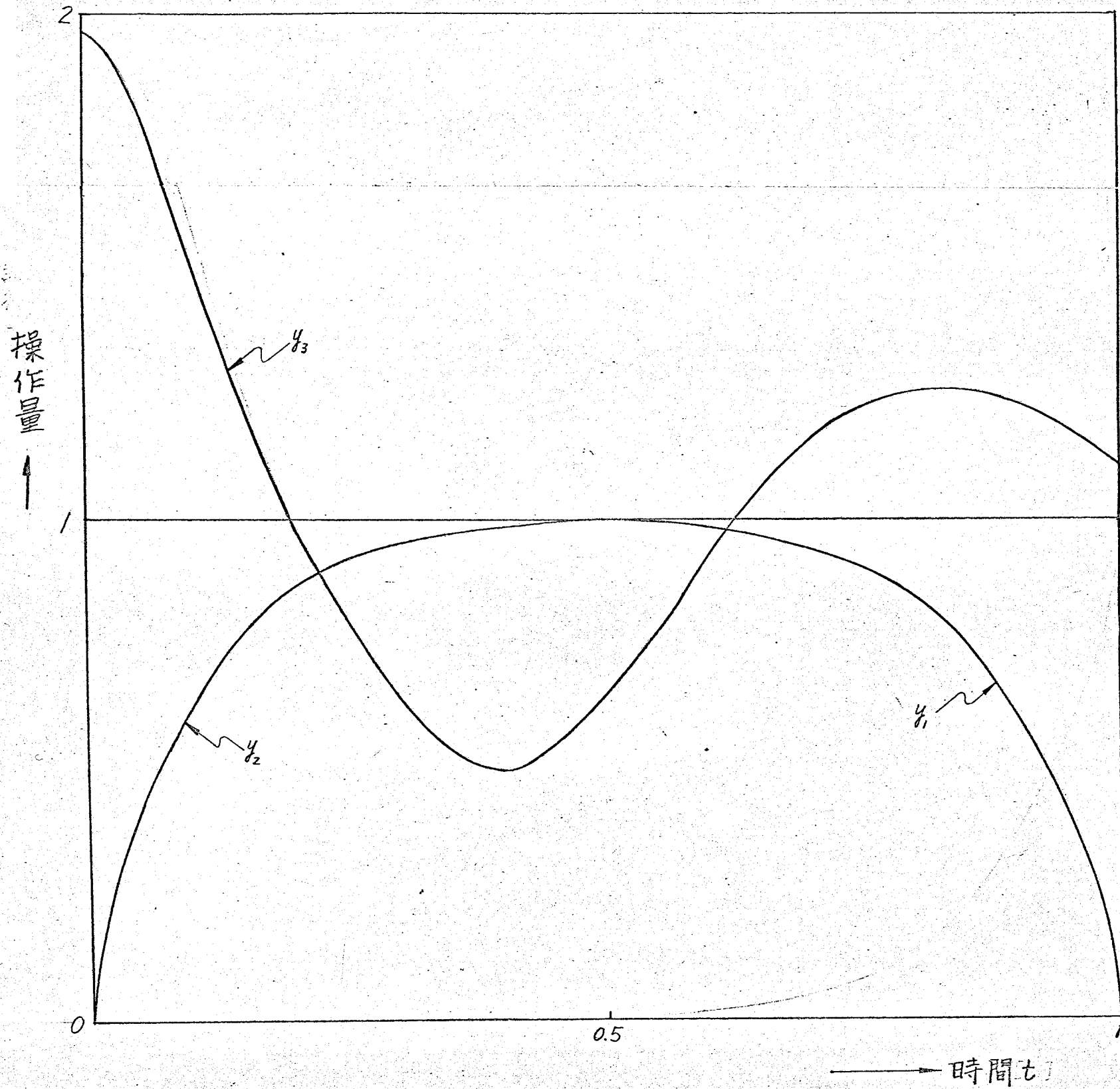


図7-2.5 各操作量の比較

した値を算出するにしよう。

最適制御系については、(7-2.19)式で示した制御偏差より

$$\begin{aligned} \int_0^1 \varepsilon_i^2 dt &= (0.1)^2 \int_0^1 \{e^{-10(1-t)}\}^2 dt \\ &= 5.0 \times 10^{-4} \end{aligned} \quad (7-2.25)$$

また、操作量については(7-2.20)式を用いて

$$\begin{aligned} \int_0^1 y_i^2 dt &= K^2 \int_0^1 \{1 - e^{-10(1-t)}\}^2 dt \\ &= 0.85 K^2 \end{aligned} \quad (7-2.26)$$

ゆえに最適制御系の評価関数の値 J_1 は

$$\begin{aligned} J_1 &= \int_0^1 \varepsilon_i^2 dt + \beta \int_0^1 y_i^2 dt \\ &= 5 \times 10^{-4} + 0.85 \beta K^2 \end{aligned}$$

ただし、ここで(7-2.18)式の条件から、 $\beta K^2 = 0.01$ であるから

$$J_1 = 90 \times 10^{-4} \quad (7-2.27)$$

以下同様にしてP-制御系およびPI-制御系に関する評価関数の値 J_2, J_3 を算出することができる。これらの結果を表7-2.2にまとめた。この表を閲覧するだけでなく、当然最適制御系の評価関数の値が最小である。また、P-制御系のそれよりも劣ることが明らかになった。制御面積と操作面積の各々の値についても同じ表から読み取ることができる。すなわち、操作面積の値はいずれも大差はないが、制御面積についてはP-制御系がきわめて劣ることが分る。

最適制御系を中心に考えて行なった上述の比較は、回分時間を $\tau: [0, 1]$ とおくことにより過渡的応答を重視して行なったものである。そこで次に回分時間がもっと長い場合について吟味を行おう。回分時間が長いときは、制御系の応答には定常応答分が含まれてくるから、この時の制御面積および操作面積は図7-2.4および図7-2.5を参照して次のようになることが分る。すなわち、最適制御系の制御面積は、(7-2.19)式の誘導からも明らかのように、回分時間の長短にかかわらずほとんど一定である。P-制御系の制御面積は回分時間にほぼ比例して増加する。PI-制御系のそれはわずかにばかり増えるが表7-2.2に示した値の約10%だけ増加するに止まる。(図7-2.6参照のこと)一方、操作面積については、最適制御系はP-制御系と同じように回分時間に比例して増加してゆく。またPI-制御系も同じ傾向で増加する。そこで回分時間の延長に伴う評価関数の値を計算

表 7-2.2 評価関数の値
(回分時間 = 1)

	制御面積 $\int_0^1 \varepsilon^2 dt$	操作面積 $\int_0^1 y^2 dt$	評価関数の値 ($\beta K^2 = 10^2$ とする) $J = \int_0^1 \varepsilon^2 dt + \beta \int_0^1 y^2 dt$
最適制御系	5×10^{-4}	$0.85 K^2$	$J_1 = 90 \times 10^{-4}$
P-制御系	85×10^{-4}	$0.85 K^2$	$J_2 = 170 \times 10^{-4}$
PI-制御系	28×10^{-4}	$1.01 K^2$	$J_3 = 129 \times 10^{-4}$

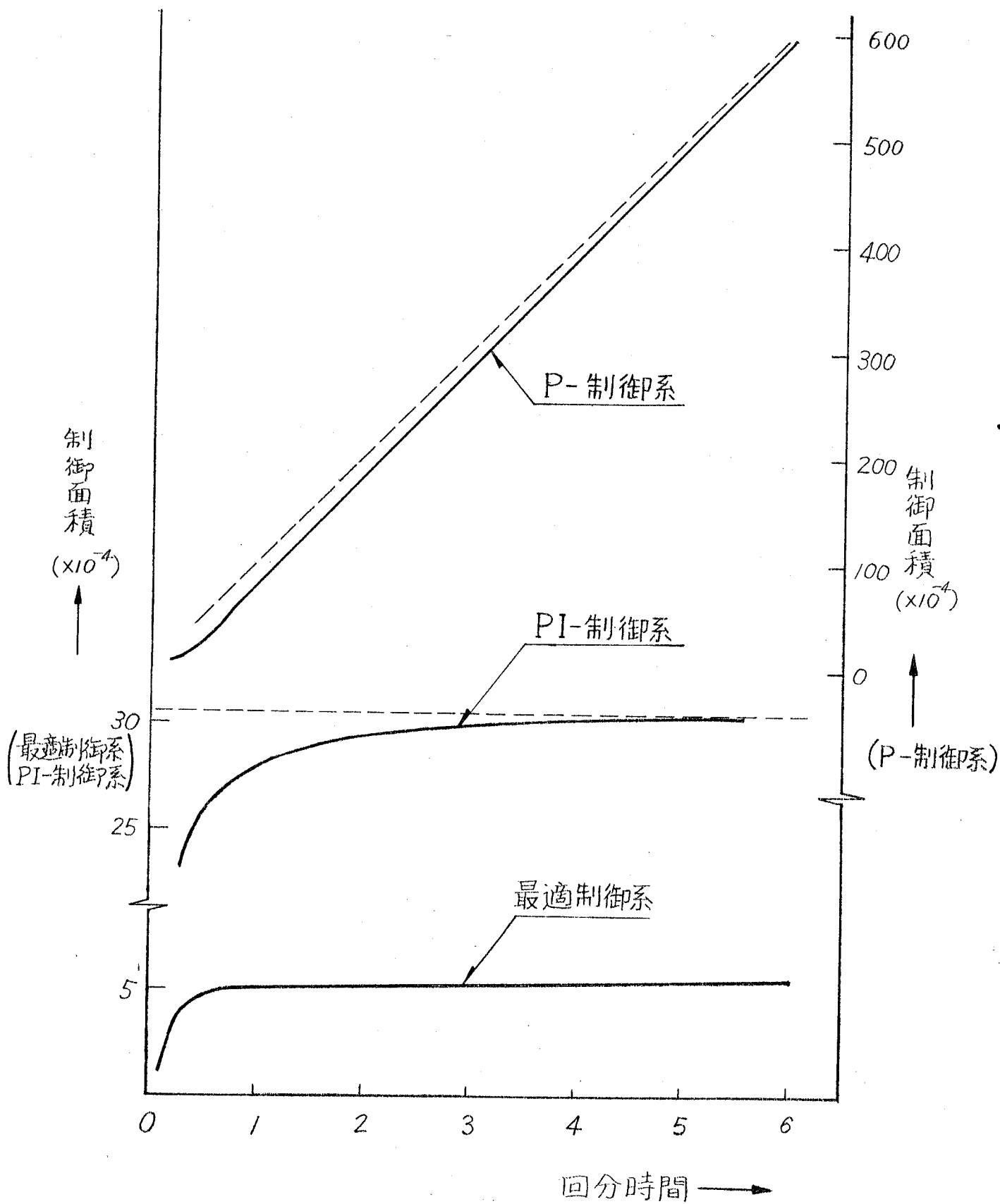


図 7 2.6 制御面積の回分時間による影響

7)

し、図 7-2-7 に記した。この図から明らかのように、PI-制御系の評価関数の値は最適制御系のそれにくらべて大差はない。これに反して P-制御系では回分時間の延長に伴ってますます差が大きくなってゆくことが分った。

以上のように、異なった観点から構成した 3 種類の制御系をとり上げ、最適制御系と各の評価関数を基準としておからの比較検討した結果、以下の結論を得ることができた。

- (1) PI-制御系の評価関数の値は最適制御系のそれにくらべて大きな差はない。
- (2) 最適制御系の制御面積は回分時間の長短にかかわらず最小である。しかし制御偏差の最終値は P-制御系の場合と同様に残っている。
- (3) 操作面積については PI-制御系がもっとも大きい。P-制御系は最適制御系のそれとほとんど等しい。

ゆえに、本節で用いた評価基準、(7-2-1)式、によって評価する限り、PI-制御系を用いれば最適制御系に近い制御効果を得ることが出来る。

本節の議論によってカタサの制御系設計に重要な指針を与えることができた。なお、具体的にはカタサの制御系の設計には当然他の制御系統との干渉などを考えの上で総合的な見地から行われるべきであり、これについては次節で詳論する。

$$J = \int_0^T \{ (\text{偏差})^2 + (\text{操作量})^2 \} dt$$

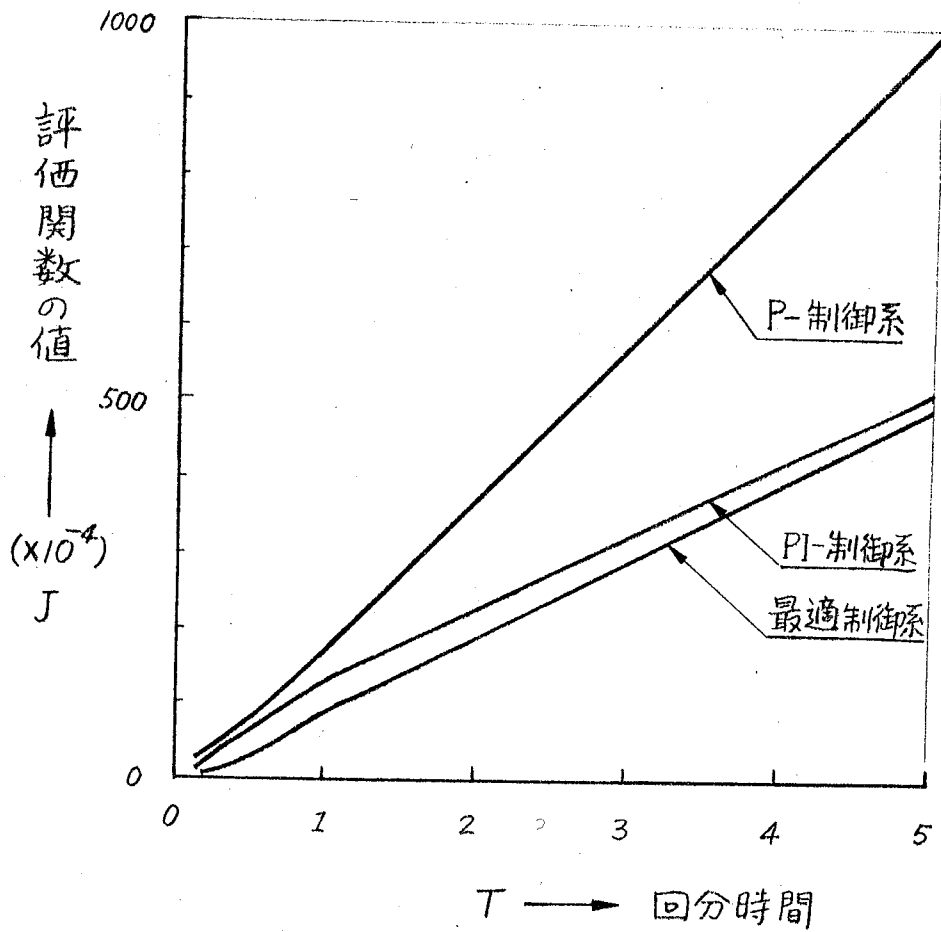


図 7-2-7 評価関数の値の比較

7-3 回分式真空結晶缶の自動制御系の設計

(i) 制御対象としての特徴および筆者の制御系構成方針

回分式真空結晶缶の制御対象としてのオーの特徴が相互干渉を含む多変数系であることは明白である。ただし缶内真空度 P_s の系統には他の系統からの干渉入力が存在していない。

オ2の特徴は(4-4.2)式で示したように、バッチプロセスに特有の大きなパラメータ変化を起こさせる最大の原因は、オ2章で指摘した煎き上げ操作である。この操作によって、缶内マスクットの容積 V_m は、バッチ終了時においてはじめの2~3倍にまで増大するから、 V_m を含む伝達要素のパラメータが無視できない変動を受けることは必定である。カタサと過飽和度 α の系統の伝達要素は、すべてこのパラメータ変動を受けている。マスクット容積以外の変動値に起因するパラメータ変化は事実上これを無視して差支えない。

オ3の特徴は、結晶缶操業の面から、各制御量の重要度もしくは製品の仕上り品質に影響する度合いの差が存在することである。すなわち、オ2章で述べた通り起晶期においては過飽和度がもっとも重要な制御量である。それにひきかえ、缶内真空度の制御系統はマスクットの温度を規制して過飽和度制御の補佐的な役割りを果たしているに過ぎない。しかし育晶期では過飽和度の重要性は次オに薄らぎ、カタサの制御がもっとも重要になっている。次項で述べるように、多変数制御系回路の一般的な性質として、各系統間にはある種の拮抗的な特性が内在している。したがって、おのおのの制御量に重要な制御系統から重点的に有利な条件で設計することが望ましく、かつ、それが可能である。

以上の準備的考察をもとにして、筆者は次のような制御系設計方針を立てるに到った。

まず多変数制御系内の各制御系統はできる限り相互干渉のないような回路構成にする。ただし、ここで筆者は完全な非干渉制御系⁽⁷⁾を目論んではいない。なぜならば、完全な非干渉制御系は回路的に極めて複雑になり、時には実現不可能な補償要素が要求される場合もあり得るからである。しかも、かりにそのような完全非干渉制御系が実現可能だとしても、その割に応答のよくない、制御効果に乏しい消極的な系になり勝ちであることが従来の研究からすでに分っているからである⁽⁸⁾。したがって筆者は、すでに指摘したように、制御系統のうちで重要なものに限って、完全な非干渉補償を行なって十分な制御を施し、他の制御系統については操業上許される限り簡単な補償を行なうだけに止める、という設計方針をとった。

つぎに第2の方針として、制御対象のパラメータ変化を補償して、系を常に指定された安定度に保つように制御することにした。制御対象のパラメータ変化は系の応答に影響をかえ、いわゆる特性根の位置を刻々に変化させるから、この影響を除くためには、パラメータ変動値の検出を行なって制御部の調整を行なうべきである。このような一種の適応制御回路によってパラメータ変化の影響を除去することができる⁽⁹⁾。

以上は制御系の回路設計の基準を与えるものであるが、伝達要素とりわけ調節器の構成手段として次の方針を設ける。すなわち、設計された制御系ができるだけ容易に実現できるために、あらかじめプロセス制御用として常用されている機器、すなわち各種のプロセス調節器や操作要素、をそのまま採用するか、もしくはそれに部分的な改造を加えた機器を基本的に使用する方針を設けることにした。

(ii) 自動制御系設計の予備的考察

回分式真空結晶缶の制御対象としての特徴の一つが相互干渉を含む多変数系であることはすでに指摘した。このような系に対する制御系すなわち多変数制御系の回路特性についてはすでに数多くの研究があるが⁽¹⁰⁾、ここでは、本制御対象のもう一つの特徴である伝達関数のパラメータ変化に焦点を合わせつつ、従来とは異なった立場から検討を進める。

A. 外乱補償について

まず外乱に着目して検討を行なう。いま相互干渉を有する制御対象の制御量 X_1, X_2 のなかで X_1 がより重要な制御量であるとす。この制御量 X_1 に関する主制御系統(図7-3-1参照)を重要視してその制御系を設計する場合、他の制御系統(X_2)から入ってくる干渉信号は一種の外乱入力と見なすことができる。また、制御対象 G_{11} のパラメータ変化は等価的に外乱として扱うことができる。主制御系統の外乱制御系を計画する有力な手段として、Kulebakinらの提奨した自立補償法⁽¹¹⁾がある。以下に筆者はこの手段を用いて上述の制御系(図7-3-1)に対する外乱のフィードバック補償回路について検討する。

図7-3-1で示したように、制御量 X_1 は操作量 Y_1 と外乱(干渉入力) F を用いて

$$X_1 = (Y_1 + F) G_{11} \quad (7-3-1)$$

(*) 自立補償法とはいわゆる Invariance principle を指す。

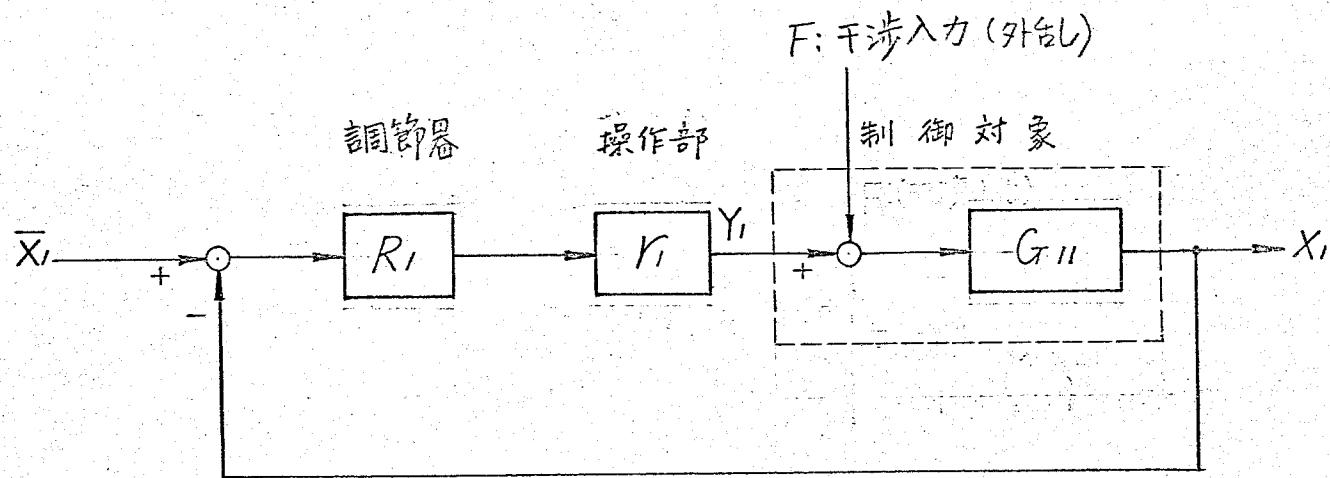


図 7-3-1 着目する制御量 X_1 の主制御系統

と表わすことができる。つぎに、伝達要素 G_{11} にパラメータ変化が起って $G_{11} \rightarrow G_{11}^{\circ} + \Delta G_{11}$ となったとき、制御量 X_1 は、(7-3-1)式を用いれば

$$X_1 = (Y_1 + F)(G_{11}^{\circ} + \Delta G_{11}) \quad (7-3-2)$$

となる。 G_{11}° は定パラメータ項の伝達関数、 ΔG_{11} は変化したパラメータ項の伝達関数である。ここで ΔG_{11} の項を等価的に外乱信号と見なすと、上式のままの形では取扱いが不便であるから

$$X_1 = (Y_1 + \xi) G_{11} \quad (7-3-3)$$

という形で表現できた、とする。新しく導入した信号 ξ は F と ΔG_{11} との関数であり、2つの外乱信号を等価的に1つにまとめた信号である。(ξ の信号は、後に述べるように、制御系の中から再生することができる。) とここで、(7-3-3)式を用いて図7-3-1を書き直すと図7-3-2(a)になる。したがって、当初の問題を、この外乱 ξ によって制御系が乱されたいための外乱補償回路を設計する問題に帰着させたことになる。

等価外乱 ξ の影響を積極的に除去するために図7-3-2(b)に示すように、補償要素 C を介して補償回路を設ける。このような補償法は外乱の完全な補償を行なう時の常套手段であり、しかも自立補償法を適用する場合の最小限の条件を満たすものである。さて、図7-3-2(b)について解析を行なう。まず(7-3-3)式より

$$X_1 = (Y_1 + \xi) G_{11}^{\circ}$$

$$\text{また } Y_1 = (\bar{X}_1 - X_1 + \xi C) R_1 Y_1$$

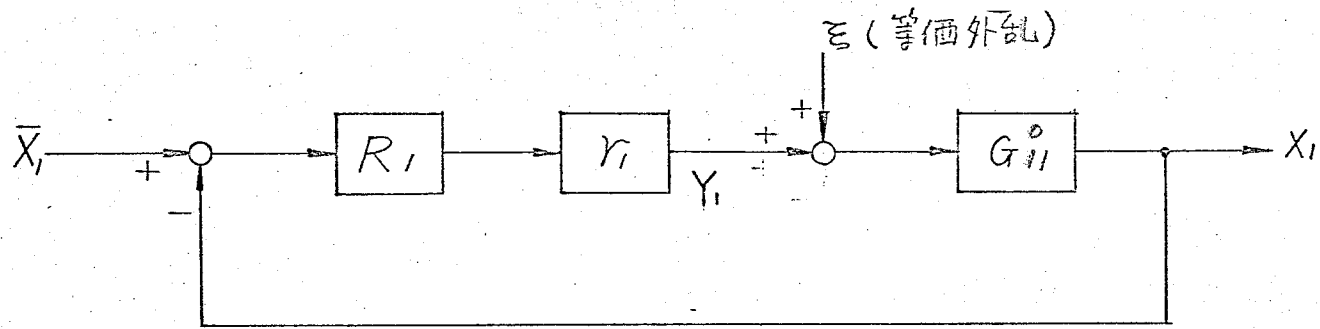
$$\text{ゆえに } X_1 = \frac{G_{11}^{\circ} R_1 r_1}{1 + G_{11}^{\circ} R_1 r_1} \bar{X}_1 + \frac{(1 + R_1 r_1 C) G_{11}^{\circ}}{1 + G_{11}^{\circ} R_1 r_1} \xi \quad (7-3-4)$$

(7-3-4)式から明らかのように、制御量 X_1 が外乱 ξ の影響を受けたいための条件は、補償要素 C が

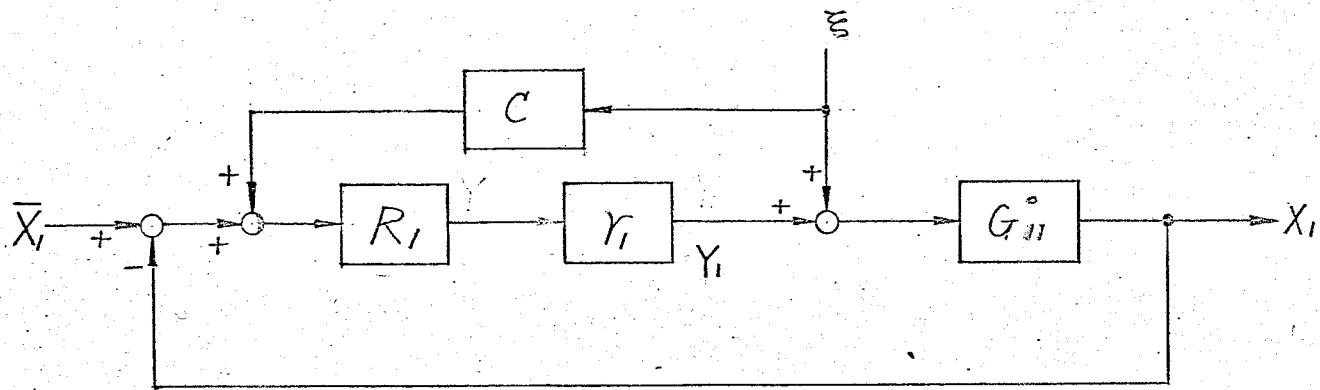
$$C = -\frac{1}{R_1 r_1} \quad (7-3-5)$$

のように設計されることである。

さて、以上の結論を総合して外乱補償回路を構成する



(a) 図 8-2.2 の等価系



(b) 外乱補償系

図 7-3.2 等価外乱系とその補償系

ために、等価的な外乱 ξ の再生法を考える。まず、(7-3-2)式および(7-3-3)式を展開し、 ξ の値を求めると

$$\xi = \frac{1}{G_{ii}^{\circ}} \left\{ F \cdot G_{ii} + Y_i (G_{ii} - G_{ii}^{\circ}) \right\} \quad (7-3-6)$$

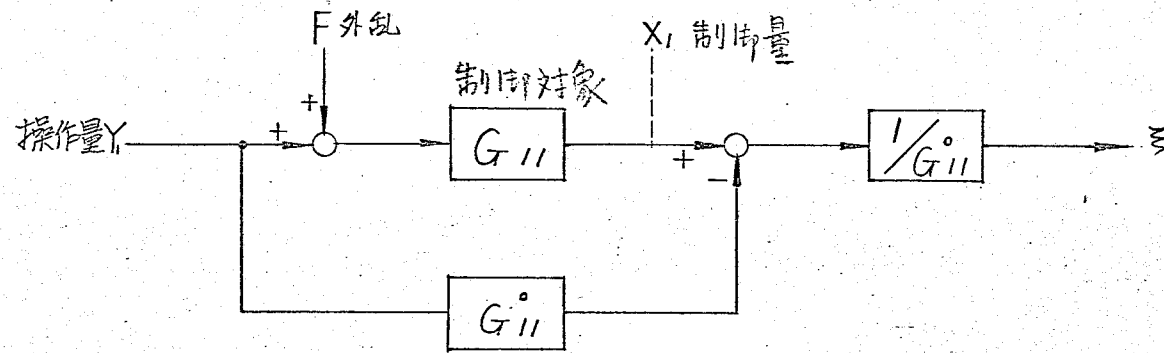
ゆえに、この信号 ξ は制御対象モデル(G_{ii})とその逆関数モデル($1/G_{ii}^{\circ}$)を用いれば再生できる。図7-3-3(a)がそれである。この ξ 信号再生系と(7-3-5)式で得た補償要素を組み合わせると、結局、求むべき完全外乱補償系を、図7-3-3(b)のように構成することができる。この補償系が実現できれば、着目する制御量 X_1 は他の制御システムからの外乱下に対しても、また自己の伝達要素 G_{ii} のパラメータ変化に対しても、完全にそれらの影響を免れることができる。

しかしながら、図7-3-3(b)で示した完全外乱補償系は厳密には実現不可能な系であることが分る。すなわち図7-3-3(b)の系を等価度換し図7-3-4(a)のように表現し直すと、同図中の調節器まわりに見られる局所的な正フィードバックループに関しては、ループゲインが無限大、すなわち

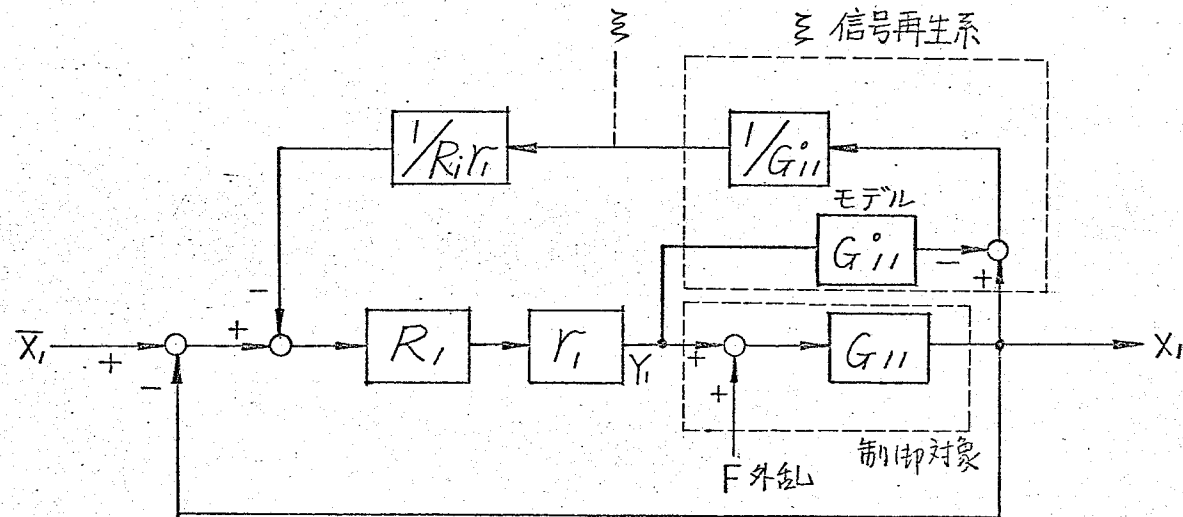
$$\frac{Y}{E} = \frac{R_i r_i}{1 - \frac{R_i r_i}{R_i r_i}} \longrightarrow \infty$$

となり、このような系は明らかに実現不可能である。したがってここでは調節器 R のゲイン定数をできるだけ大きくとることによって近似的に実現させることしかできない。したがって、も一つの局所的フィードバック要素 $1/G_{ii}^{\circ}$ が実現できるならば、図7-3-4(a)の系は同(b)のような系で実現することができる。

図7-3-4(b)で示した外乱補償制御系は回路特性から判断すると、明らかに干渉項にもとづく外乱下 ΔG_{ii} のパラメータ変化 ΔG_{ii} の双方の影響を軽減する特性を持っている。すなわち、外乱下に対してはゲインの大きい調節器と制御対象まわりの局所フィードバック経路によってその影響を減少させている。また、制御対象 G_{ii} のパラメータ変化に対しては局所的フィードバック経路がその影響を小さ

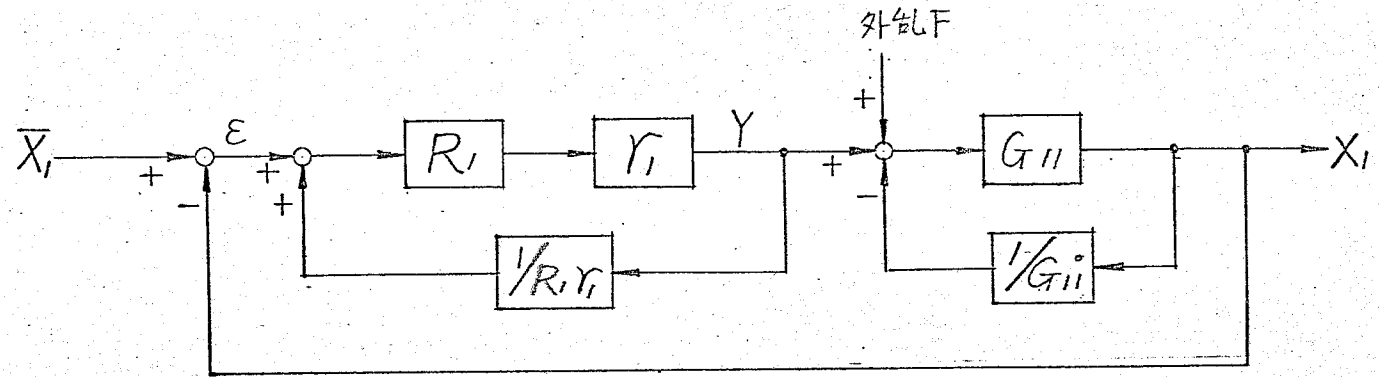


(a) 等価外乱系の再生系

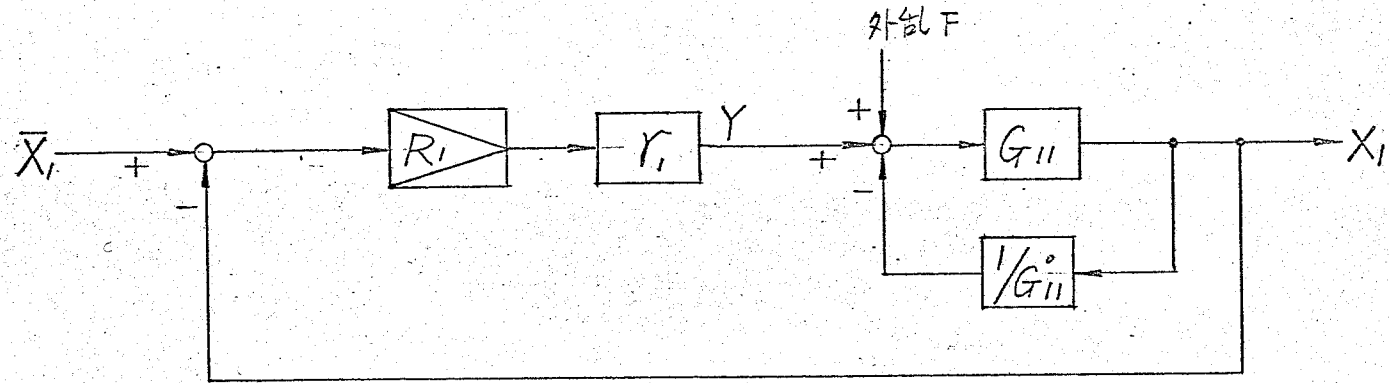


(b) 完全外乱補償系

図 7-3-3 完全な外乱とパラメータ変動の補償系



(a) 図 8-2-4 (b) の等価変換系



(b) 実現の可能性のある外乱およびパラメータ変動の補償系

図 7-3-4 外乱とパラメータ変化に対する補償制御系

く押えてゐる。すなわち局部的フィードバック経路が無い場合に比べてパラメータ変化にもとづく影響は $\frac{1}{2 + \frac{\Delta G_{ii}}{G_{ii}}}$ 倍に減少しており、変化分 ΔG_{ii} が大きくなればなるほどこの減少の割合は大きくなること分かる。

以上の自立補償法にもとづく議論によつて、他の制御系統からの干渉入力と自己の制御対象内でのパラメータ変化とをあわせて補償する制御系(図7-3.4(b))が設計できることが分つた。

B. パラメータ変化に適應する制御方式

つぎに育晶期におけるもっとも重要なカタサの制御系を考へ、この制御系のパラメータ変化に適應する制御系の設計を行なう。ここでは適應系の評価基準として制御系の安定度、すなわち制御対象のパラメータ変化に適應して、制御系をつねにある定まった安定度に保持する場合を考へる。この評価基準を満足させるためには、制御系のいわゆる S -面(複素平面)における特性根の位置が、つねに同じ位置に存在する必要がある。

母液流量に対するカタサの伝達関数 $G(s)$ は(4-3.54)式によつて

$$G(s) = \frac{K}{S^2} \quad (7-3.7)$$

である。(*) ここでゲイン定数 K はマスクットの容積 V_m の関数で、煎き上げ操作に伴つて K の値は次第に減少する傾向を持つてゐる。さて、この制御対象を、すでに述べた筆者の方針にしたがい、いわゆる PID 調節器で代表されるプロセス調節器 $G_p(s)$ で図 7-3.5 のように制御する場合を考へる。

この制御系について、目標値 \bar{X} と外乱 F に対する制御量 X の応答は、

$$X = \frac{G_p \cdot G}{1 + G_p \cdot G} \bar{X} + \frac{G}{1 + G_p \cdot G} F \quad (7-3.8)$$

いまカタサ X が目標値 \bar{X} に対してオフセットなしで追従し、

(*) この伝達関数(7-3.7)式は育晶期の初期のものである。(附録(4-5)参照のこと)

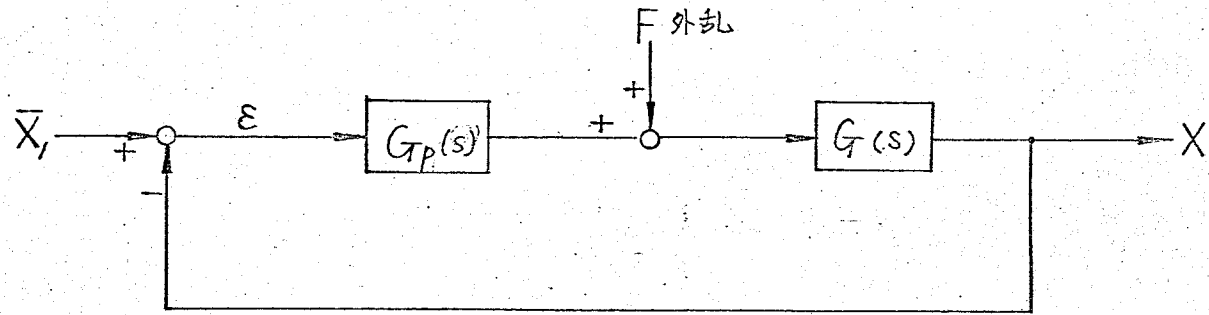


図 7-3.5 制御系の例

2

しかも外乱 F を定常偏差が残らないように打消すためには、調節器 $G_p(s)$ はPID動作を持たねばならないことは自動制御の理論から結論できる。したがって調節器の伝達関数 $G_p(s)$ を

$$G_p(s) = K_p \left(1 + \frac{1}{T_I s} + T_D s \right) \quad (7-3.9)$$

とおく。ここで K_p は比例ゲイン、 T_I は積分時間、 T_D は微分時間である。

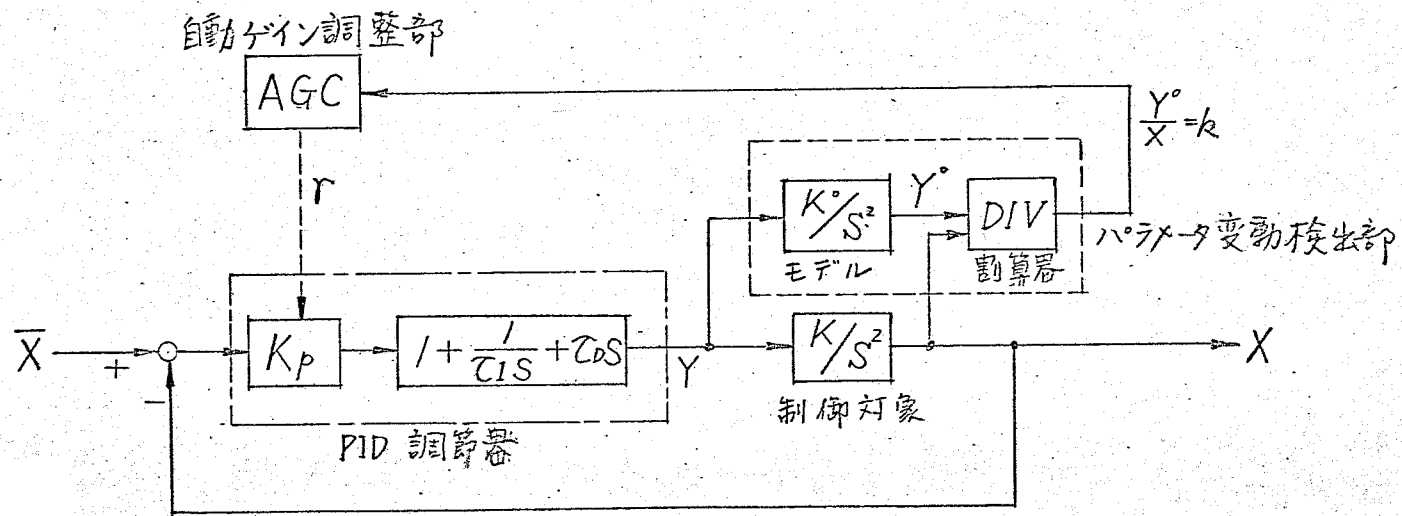
制御系の特性方程式 $1 + G_p \cdot G = 0$ に(7-3.7)、(7-3.9)式を代入し整理すると

$$s^3 + K K_p T_D s^2 + K K_p s + \frac{K K_p}{T_I} = 0 \quad (7-3.10)$$

言うまでもなく、評価基準としての根の位置は特性方程式(7-3.10)式の各係数値から定まる。したがって制御対象のパラメータ K を含む(7-3.10)式の各係数値をほぼ一定に保つような操作を行えば根の位置は不変になり、したがってこの制御系は制御対象のパラメータ変動に適応してつねに所定の応答を示す。さてこのことをもっとも簡単な方法で実現するために、(7-3.10)式の各係数値に共通する $K K_p$ の値だけに着目して、 $K \cdot K_p = \text{一定}$ という操作を行なう方法が考えられる。筆者はここではこの方法を採用する。したがって調節器の積分時間 T_I と微分時間 T_D は固定したままで、ゲイン K_p の値だけを上記の $K \cdot K_p = \text{一定}$ という関係を保つように操作できる制御系を構成すれば、この制御系は筆者の意味における適応性をもっているといふことができる。

つぎにこの方法にもとづく適応制御系の構成を行なう。まずパラメータ K の变化はすでに述べたようにマスキット容積 V_m の増加に伴って連続的に減少する傾向にあるから調節器のゲイン K_p を連続的に増大させることが必要である。*)そこで筆者は図8-3.2に示す制御系を提示す

*)安定度の変動がある程度許されるならば、 K_p の操作は多段切換え方式で行なっても差支えない。



(d) ブロック線図 (DIV: 割算器, AGC: 自動ゲイン調整器)

図 7-3-6 パラメータ適応制御系の構成

3
る。この適応制御系にはパラメータ検出部すなわち制御対象の同定器、とゲイン調節部とからなる補償回路が設けられている。前者は制御対象モデルと割算器を用いて構成できる。また後者は自動調整におけるいわゆる自動ゲイン調整装置 (AGC) に相当する。

以上の方法によつて、制御対象のパラメータ変化に適応して常に制御系の安定度を一定に保持する制御系の設計を行なうことが出来る。すなわち、ここではモデル法によつてパラメータ変化の検出すなわち制御対象の同定を行つたが、さらに検討を行なうならば、制御対象の液位検出によつてこの同定を行なうことが可能であり、したがつて図7-3.6で示した適応制御系はさらに簡便に実現出来る。このことについては次節で詳しく述べる。

(iii) 自動制御系の設計

本章の前節までに検討してきた回分式真空結晶缶の各論的な結論を総合し、筆者の考えにもとづく自動制御系を構成する。

まず第4,5章で得た結論から本題の回分式真空結晶缶の特徴を整理する。すなわち

① 制御対象の伝達特性は図7-3.7のようなブロック線図でまとめて表現することができる。

② 起晶期における制御系は過飽和度をもっとも重視して設計せねばならない。

③ 育晶期における三つの制御量のうち、カタサがもっとも重要である。缶内真空度の制御は起晶期と同様に過飽和度に対する外乱制御と見なすことができる。

④ 育晶期では制御対象に含まれる伝達要素はすべてパラメータ変動を示す。(煎き上げ操作に伴うマスキット容積 V_M または蒸気空間の容積 V_S の変動に起因している。)

以上の特徴と前節までに得た結論を総合して以下に具体的な自動制御系を、起晶期と育晶期とに分けて構成する。

A. 起晶期の自動制御系

制御系設計の立場からみた起晶期の特性には第4,5章で述べた二つの著しい特徴がある。すなわち、この起晶期においては制御対象の伝達要素には回分式プロセスにあり勝ちなパラメータ変化などの特性変動がごく小さいということ、および過飽和度の定値性が非常に要求されるということがそれである。起晶期における制御系の設計方針として、缶内真空度の制御系統と過飽和度制御に對する補助的な系統とを考え、パラメータなどの特性変動を考慮せずに制御系の構成を行っていくことにする。

図7-3.8に起晶期の制御対象のブロック線図を示した。図に示した外乱のうち缶内真空度の系統に入っている外乱 F_1 は混合凝縮器や真空ポンプの負荷変動に起因するもの

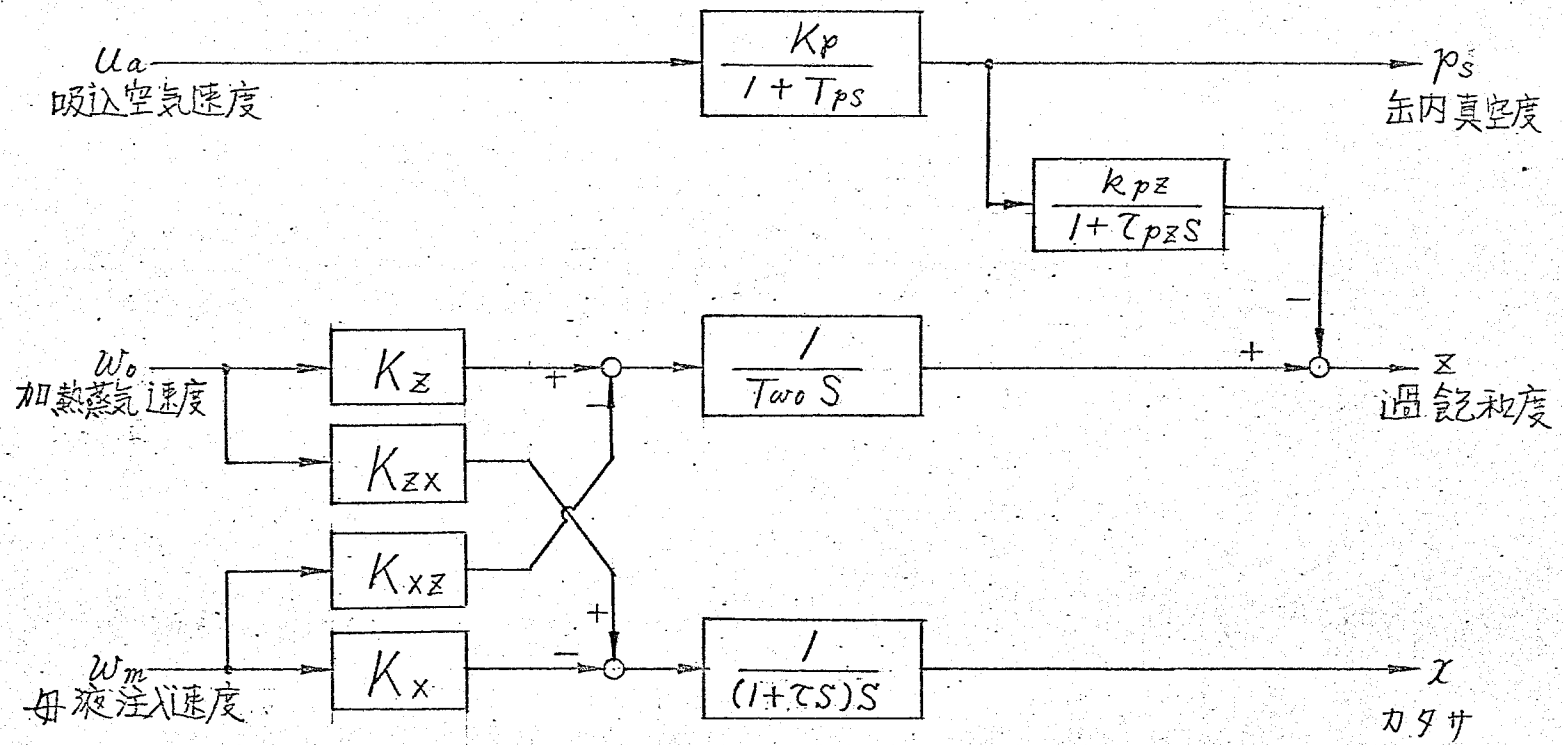


図 7-3.7 制御対象のブロック線図

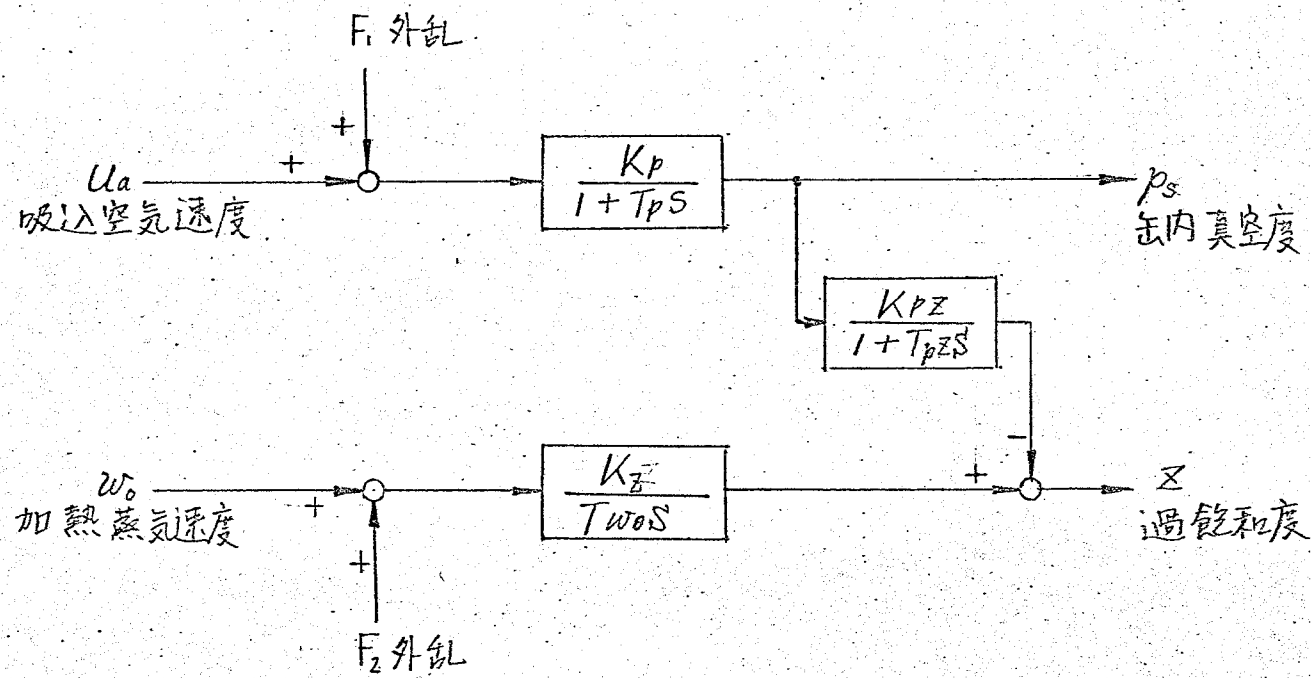


図 7-3.8 起晶期のブロック線図

ので、これは多数の結晶缶を並列運転する生産工程では避けることが困難な外乱である。また過飽和度の系統に入っている外乱はマスケット循環用の差し水に起因するもので、強制攪拌機を設置していても結晶缶ではこの外乱は必ず考慮すべきものである。

制御対象としての特性および実操業条件を総合的に考慮した結果、筆者は図7-3-9に示す結合制御系を構成した。

この制御系の特徴は

① 過飽和度制御系統から缶内真空度制系統へ向って結合回路を設けたこと。

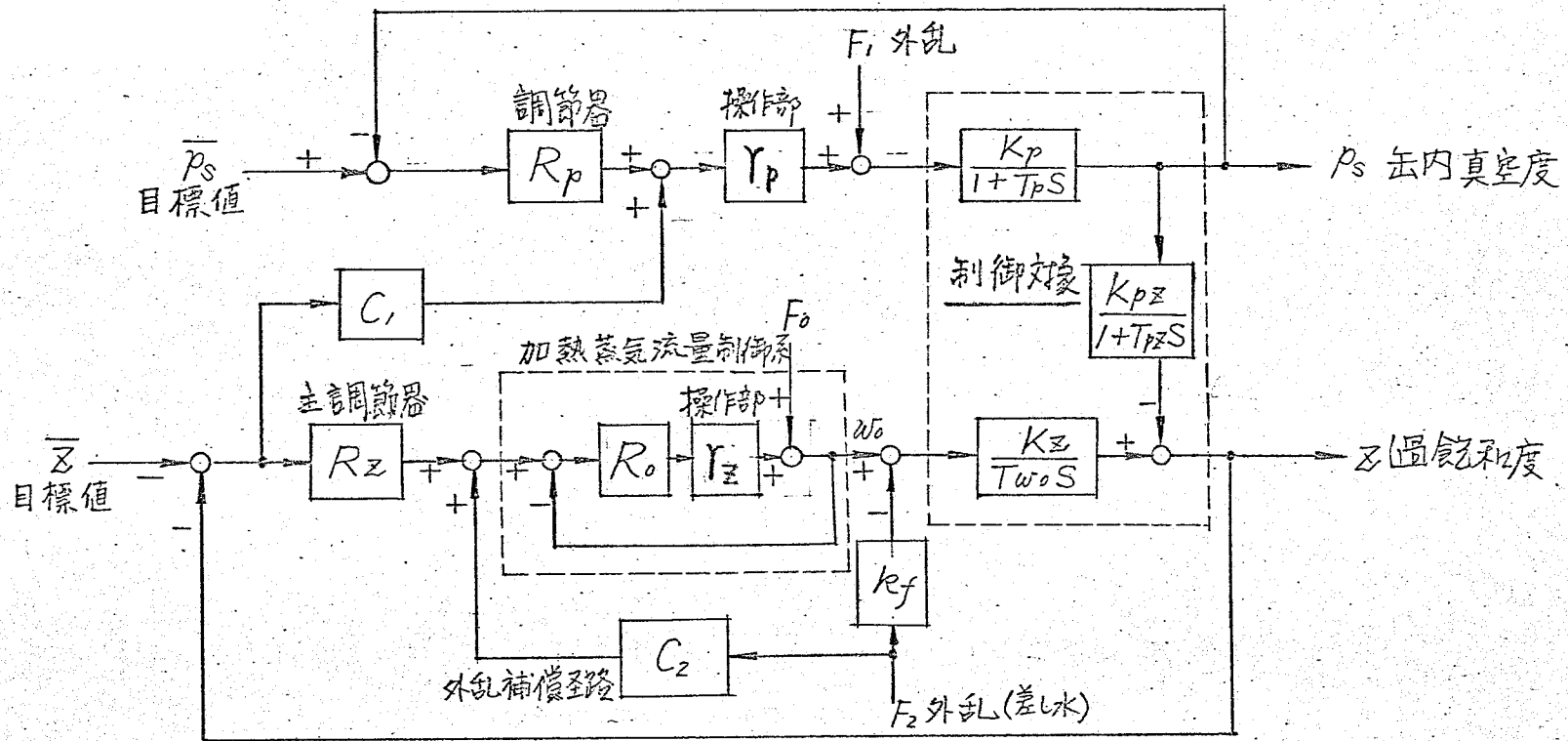
② 加熱蒸気流量制御系をカスケードに挿入したこと。

③ 外乱 F_0 の補償経路を設定したこと。

である。以下に各々その事由と利点を述べ、要素の構造と決定する。

① 伝達要素 C_1 を介して結合経路を設置したの1つ、過飽和度の共役の操作量である加熱蒸気は操業上の制約によつて十分な操作能力を發揮できない場合を補うためである。すなわち、図示の結合経路を設けることによつて、缶内真空度 $p_s \rightarrow$ 母液温度 $\theta_{m2} \rightarrow$ 過飽和度 Σ という新しい制御系統が加わることと等価になるから操作能力の不足を補うことができる。このとき、制御回路の一般的な性質から、缶内真空度 p_s に結合経路からの入力の定常偏差が残らないためには結合経路の加え合せ点は調節器 R_p の後に行われなければならない。また同時に調節器 R_p はPI動作をもつ必要がある。また結合要素 C_1 は(0次)比例要素で充分であり、そのゲインの大小によつて結合の強さを調整することができる。

② 過飽和度の制御系統をカスケード系に設計したのは、蒸気系統にしばしば入ってくる外乱の影響を減少させる点にある。このカスケード制御系は、このような蒸気源の外乱に対処するために是非必要とされるものである。外乱 F_0 が加わった場合、加熱蒸気流量 W_0 にオフセットが残らないうような条件から、 R_0 はPI動作で行われなければならない。



R_p : PI 調節器
 R_z : PID 調節器(主)
 R_o : PI 調節器(従)
 C_1 : 比例要素
 C_2 : $k_f/(1+T_I S)$

図7-3.9 起晶期における自動制御系

いことが分る。

③ 外乱 F_2 は主として循環用差し水 (温水) と考えられる。しかしこの温水注入流量は充分検出可能であり、しかも差し水に対する過飽和度の伝達特性はあらかじめ分かっているから、これを図のような、径路によって補償することができる。外乱 F_2 の加熱蒸気流量への伝達要素 G_f は比例特性をもっているから、補償径路の伝達要素 C_2 は附録 (7-2) の考察によって

$$C_2 = \frac{G_f}{1 + T_I S} \quad (7-3-11)$$

とおくことと推奨する。ここで時定数 T_I は調節器 R_2 の積分時間にほぼ等しく設定するものとする。

そこで最後に過飽和度の主調節器 R_2 の伝達特性を定めて全体のしめくりを行なう。過飽和度は起晶期における最も重要な制御量であるが、この制御量の過大な行きすぎ応答、すなわちいわゆるオーバー・シュートは好ましくない。すなわち過飽和度が目標値より一時的にせよ高い状態に行き過ぎた場合、マスケット中に偽晶が発生しやすくなるからである。そこでこのような制約を満たし、しかも制御偏差にオフセットを残さないような調節器には PI および PID の動作をし二種類の調節器が考えられる。しかし、このうちで PID 調節器の方が比例ゲインを大きくとることができるから、外乱に対して強く、しかも応答時間が早くできるという大きな利点をもっている。(附録 (7-3) 参照)。したがって筆者は過飽和度の主調節器 R_2 は PID 調節器にすべきであると結論する。以上の議論によって筆者の構成した制御系とその各伝達要素の特性を決定することができた。図 8-43 にその要点を附記した。

B. 育晶期の自動制御系

育晶期における自動制御は、操業上とくに初期の部分が重要である。しかも前期は、煎き上げが進んだ後期よりも制御しにくい特性をもっていることが分かっているので (4-3 節(ii) 参照) ここでカクサの伝達関数は初期のもの、すなわち (4-3-54) 式の形を採用し ($1/T_m S^2$)、自動制御系の設計を考える。育晶期の特性はパラメータ変動を伴なう相互

7
 干渉多変数系である。また、三つの制御量のうちでカタサが最も重要であり、過飽和度の重要性は起晶期の場合とくらべて格段の低下を示している。(4-3節参照のこと)
 筆者は育晶期における特性と操業条件を考慮した結果、
 (ii) 図7-3-10に示す制御系を構成した。この制御系の特長は次の4点である。

① 起晶期について、筆者の制御系(図7-3-9)との相違は、結合経路 C_1 と外乱補償経路 C_2 を除いた点にある。

② 釜内真空度 p_s の制御系統にパラメータ補償経路 C_3 を設けた。

③ 過飽和度からカタサへの干渉要素 K_{xx} を非干渉補償要素 C_4 と設けた。

④ カタサの主調節器 R_x に自動ゲイン調整要素AGCを設け、カタサの伝達要素のパラメータ変動を補償した。

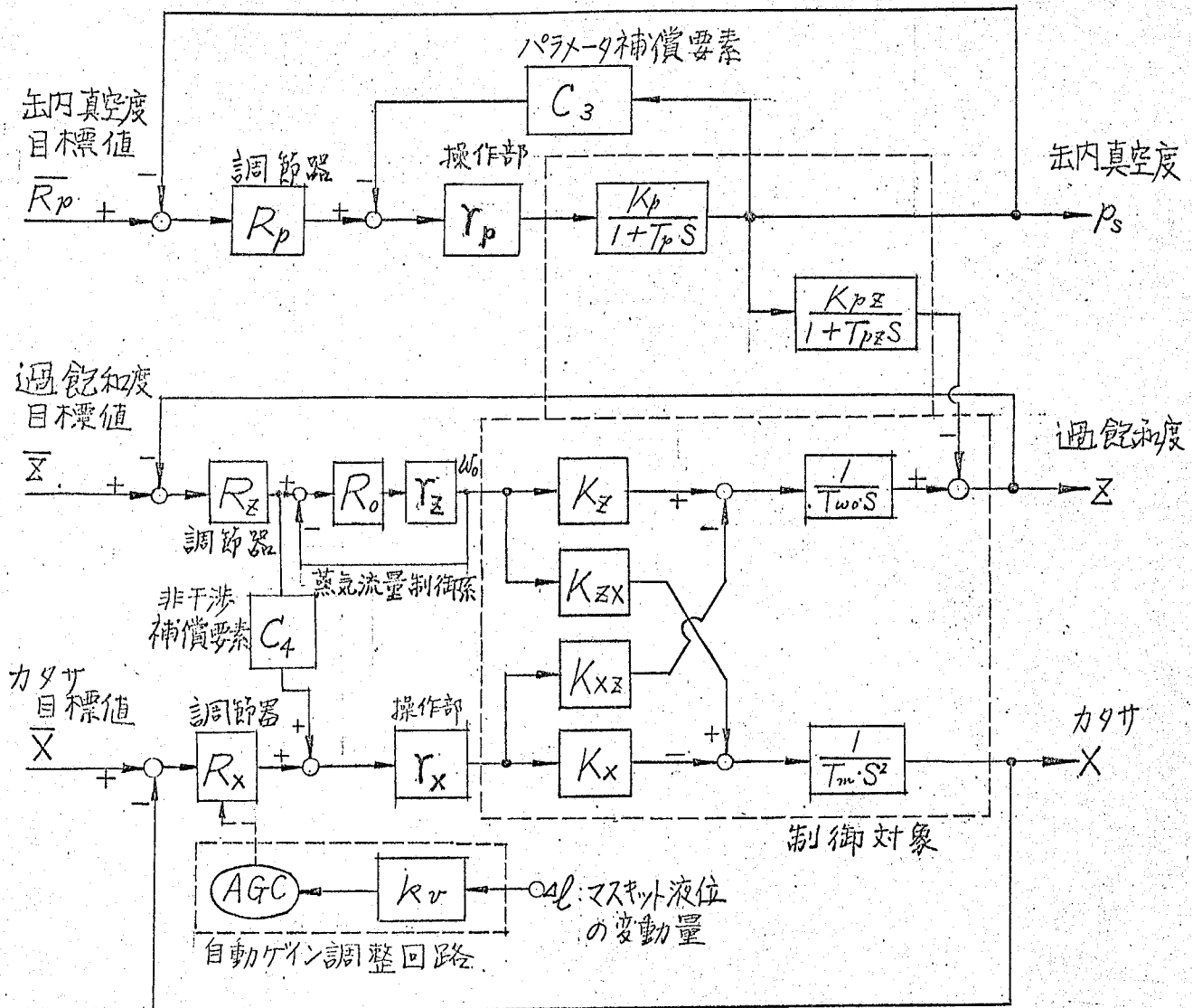
以下、これらの特徴と詳論し、各要素の伝達特性を決定する。

① 結合経路 C_1 を除いた理由は、育晶期では過飽和度の厳密な定値制御が起晶期ほどには要求されないからである。それと同時に、育晶期の後半に至るとマスクット中の結晶容積分率が極めて高くなり、過飽和度の検出自体が不正確さを増す傾向にあるから、非干渉制御の理論によつて、その厳密な制御は却つて干渉関係にあるカタサの制御系統の制御効果を妨げる弊害をもたらすからである。

② 7-3(ii)で行なった逆関数補償法の結果を用い、図7-3-4(b)に示した補償経路と釜内真空度 p_s に適用した。釜内真空度の伝達関数の時定数 T_p は釜内の蒸気空間容積 V_s の関数で、(4-1.20)式より

$$T_p = \frac{V_s}{F - \bar{u}_a}$$

蒸気空間の容積 V_s は蒸き上げ操作に伴つて次第に減少するからこの時定数 T_p も同時に減少する傾向を示している。釜内真空度はPI調節器 R_p によつて制御されるから(前項参照)この時定数を減少によつて真空度制御系統の応答は速や



- R_p : PI 調節器
- R_z : PID 調節器
- R_x : PID 調節器 (AGC 付き)
- C_3 : PD 調節器
- C_4 : 比例要素

図 7-3-10 育晶期における自動制御系

かとなるがその反面、場合によつては安定度を低下させることもあり得る。したがつて、このパラメータ(時定数)の変動を補償して、それによる影響をできるだけ軽減するためには、図7-3-4(a)に示した逆関数補償法がもっとも簡便なしかも実現の容易な方法であることが分る。すなわちこのとき補償要素 C_3 の備えるべき伝達特性は、操作部 r_p を比例要素と見ることができらるから、

$$C_3 = \frac{1}{r_p K_p} (1 + T_p S) \quad (7-3-12)$$

この伝達要素をもつプロセス調節器はPD調節計である。補償要素としてのこのPD調節計の比例ゲイン K_r および微分時間 T_D の設定値は7-3(ii)の議論によつてそれぞれ

$$K_r = 1/r_p K_p \quad T_D = T_p \quad (7-3-13)$$

とせねばならない。ここで通常のプロセス調節器における微分時間 T_D の設定可能範囲は、空気式調節器において $T_D = 1$ 秒~数十分くらいが普通である。筆者が実験を行つた、大規模の真空結晶缶では時定数 T_p は約30秒くらいである。また、一般に T_p の値は上記の工業用PD調節器の微分時間 T_D の設定範囲内にあると考えられる。ゆゑに(7-3-13)式の関係は充分に満足させることができらる。よつて補償要素 C_3 の実現性を確かめることができた。

③ 非干渉補償要素 C_4 は、過飽和度からの干渉要素 K_{zx} を補償するために設けた。言うまでもなく、これに力をつけるという制御量を重点的に制御するためのものである。 C_4 の理想的な伝達特性は、

$$C_4 = \frac{K_{zx}}{K_x r_x} \cdot \frac{R_o r_z}{1 + R_o r_z}$$

ここで右辺の第2項は過飽和度制御系内における、加熱蒸気の流量制御系の伝達関数を示している。本題の立場から、これを単に比例要素と見ることができらる^(*)から、

* 前項③と同じ理由による。附録(7-2)参照のこと。

ここでは補償要素 C_f と比例要素

$$C_f = \frac{K_x r_x}{K_x r_x} \quad (7-3.14)$$

とする。

④ カタサの調節器 R_x を PID 調節器とし、その比例ゲイン K_p を自動ゲイン調整要素 AGC によって自動調整する目的は、7-3.2B 節に述べた通りである。すなわち PID 動作の調節器を用いるのは、制御量 X がプログラム目標値 X にオフセットがしで追従し、同時にステップ状と考えられる外乱入力に対してもオフセットが残りないためである。また AGC を用いたことは、煎き上げ操作に起因する制御系の安定度の変化を補償する一種の適応制御系とするためである。7-3.2B 節では図 7-3.6 に示したような制御系、すなわち比例ゲイン調整部とパラメータ変動検出部を用いる適応制御系を提案したが、ここではより実際的かつ簡便な方法でこの目的を達成できることを示す。すなわち、制御対象のパラメータ変動 ΔK は、煎き上げによるマスキット液位の変動 Δl から直接算出できることができる。マスキットの液位は、通常シークンス制御のために別途に検出されておるから、この信号を制御対象のパラメータ変動検出用として積極的に利用可能であることは、實際上有意義であると考えられる。このような方法による自動ゲイン調整回路を図 7-3.10 に示した。ここで K_{ii} は $(\Delta T_m / \Delta l)$ から定まる定数である。とくに回分式プロセスの制御において、制御対象の特性変動を制御系に含まれていない量から比較的簡単な検出器によって間接的に求めることができる場合が多い。このような情報の有効な利用法は今後のプロセス制御に残された課題である。と筆者は考える。

以上で筆者の考えにもとづく育晶期の自動制御系を構成することができた。図 7-3.10 に各要素の特性の要点を附記した。

(iv) シミュレータによる自動制御系の吟味

前節において設計し能括した筆者の自動制御系を吟味するためアナログ計算機によってシミュレータを構成し、模擬実験を行なった。その結果、筆者の自動制御系がすでに述べた設計方針を満たすすぐれた応答を示すことを確認がまたばかりでなく、この自動制御系の特徴と適用範囲をも明確にすることができた。

一般にシミュレータによる実験について種々の目的および効用が考えられてゐるが、ここでは次のようなことを目的とした。

- ① 非線形要素の影響を定量的に吟味する。：回分式真空結晶缶の特性にはすでに述べたように、ヒラメータ変化や飽和現象などの伝達特性が含まれており、またその制御系設計に際してあえて線形仮定を行なった箇所がある。これらの影響を定量的に吟味しておく必要がある。
- ② 調節器および補償要素の効果を確かめる。：調節器および補償要素の伝達特性は、すべてある特定の制御効果ないしは補償効果を実現するように設計した。これらの効果が理論的に議論した通りであるかを吟味する。
- ③ 補償系統を回路的に吟味する。：相互干渉やヒラメータ変化などを補償するために設けた系統が、回路的に妥当であることを吟味する。

以上のような目的で実験を行ない、さらに最終的に、全制御系の応答を吟味した。

筆者はシミュレータとしてアナログ計算機を採用した。このアナログ計算機(日本電気製 NEC A-300形)は表7-3-1に示す演算ユニットで構成されており、全トランジスタ式、低速くり返し兼用形である。また、応答の記録はペン書きオシログラフで行なった。これらの装置によって十分なシミュレーションを行なうことができた。

A. 起晶期の自動制御系の吟味

表 7-3-1 シミュレータとして用いたアナログ
計算機の仕様

線形演算ユニット	
加算積分器	24 (台)
加算係数器	24
非線形演算ユニット	
係数ポテンシメータ	60 (台)
汎用演算増巾器	16
乗算素子	4
関数発生器	4
ダイオード素子	20
補助演算抵抗器	20
コンパレータ素子	4

筆者が求めた起晶期の制御系(図7-3-9)は7-3(Ⅲ)節で述べた考えにもとづいて設計したものである。したがって、シミュレータによってこの制御系を吟味すべき具体的な問題点は以下の3点に集約できる。

- ① 缶内真空度の伝達関数 $K_p/(1+T_p \cdot S)$ の時定数 T_p は操作量の正負に対応して異なった値を示す。この非対称な特性の影響を吟味すること。
- ② 外乱 F_2 (差し水による外乱) に対する補償要素 C_2 の効果の検討。
- ③ 過飽和度制御系統から缶内真空度制御系統へ向って設けた結合要素 C_1 の効果の検討。

B. 育晶期の自動制御系の吟味

起晶期の場合と同様に、7-3(Ⅲ)節で示した設計方針にもとづいて構成した育晶期の自動制御系(図7-3-10)に対して、吟味すべき問題点は具体的に次の3点に集約することができる。

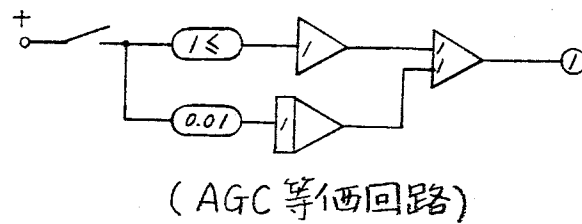
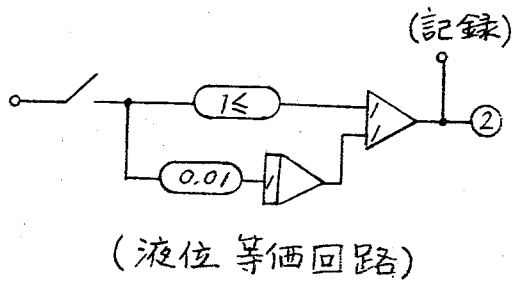
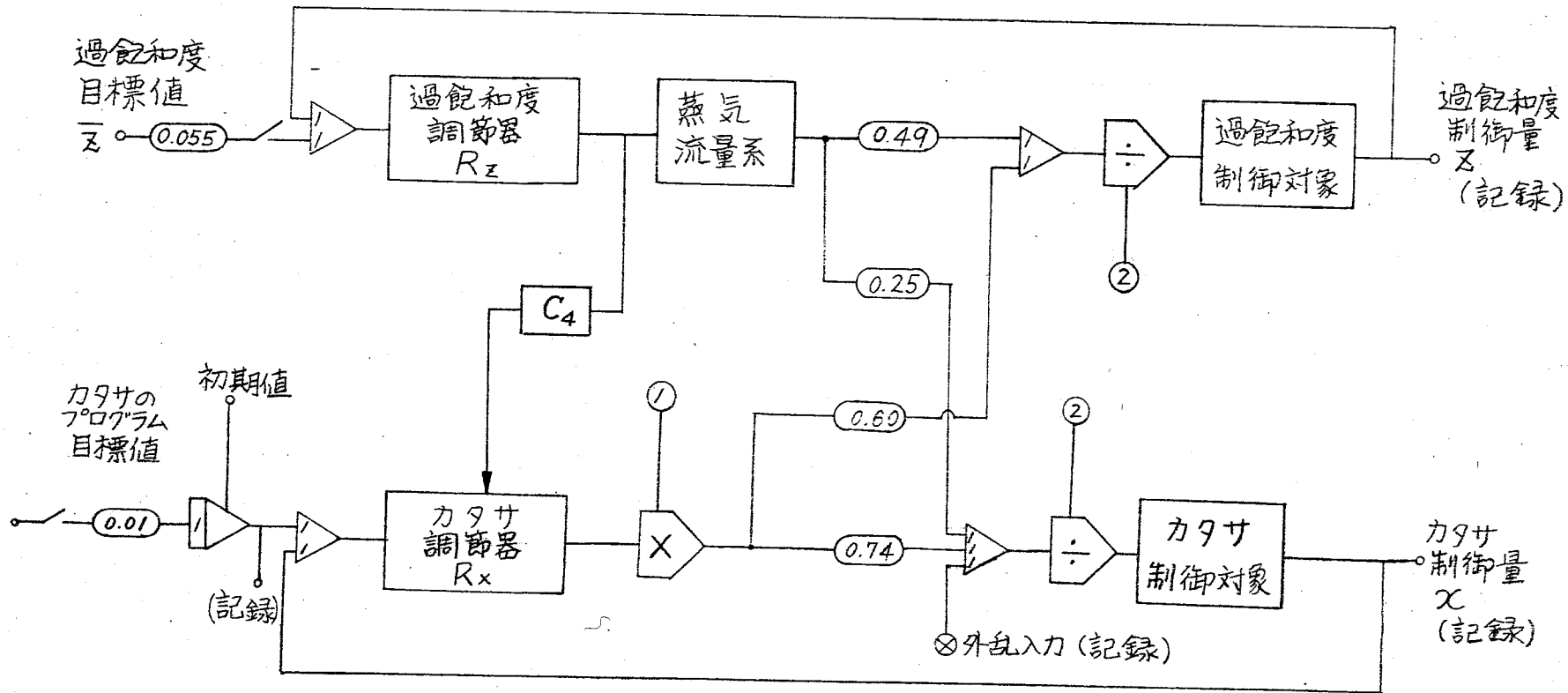
- ① 缶内真空度の制御対象のパラメータ変動を補償するために設けた補償要素 C_3 の効果を吟味すること。
- ② 過飽和度からカタサへの相互干渉を軽減するための非干渉補償要素 C_4 の効果を吟味すること。
- ③ カタサの調節器のゲインをマスク液位の変動に応じて自動的に調整する回路の適応効果を吟味すること。

以上の問題点についてそれぞれ実験を行ない、筆者の制御系の妥当性が証明された。ここではそれらの結果のうちでもっと重要と思われる B-③項、すなわちカタサ制御系統の自動ゲイン調整回路の効用に関する実験結果のみを示す。

カタサの制御系は、煎き上げに伴う制御対象のパラメータ変動に適応して応答の安定度が変化しないように設計した。調節器 R_2 に設けた自動ゲイン調整回路がそれである。ここでは、パラメータ変動分がマスク液位の変動分に比例するような回路を組織した。また、過飽和度からの相互

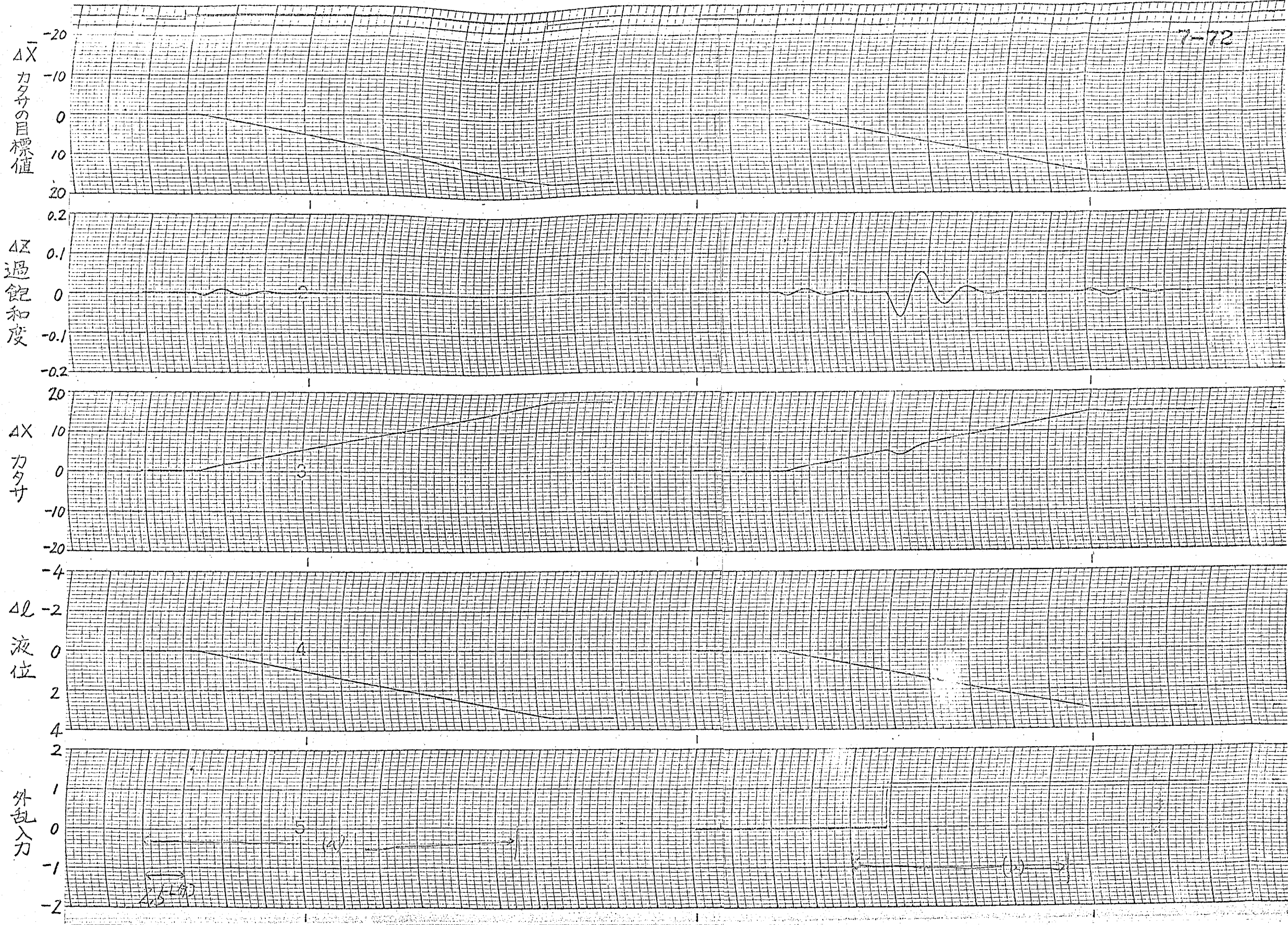
干渉は、すでに本項目②で述べたように、補償要素C4で十分に非干渉化できているから、過飽和度の制御系は除外して考えて差支えない。さて、このようにして図7-3-11に示すシミュレーションを行ない、カタサのプログラム目標値の入力に対する応答を実験した。ここで制御対象のパラメータ T_m はもちろんマスク液位に比例して増大させてある。また調節器の調整はあらかじめ初期のパラメータについて最適調整を行っておいた。図7-3-12に応答を示す。このプログラム状、目標値に対する応答は、外乱入力を加えることによつて求めた。この応答から明らかにAGC回路の効果を認めることができる。すなわち、AGC回路を挿入した場合はマスクの量とはほとんど関係なく一定したステップ応答を示しているが、逆にAGC回路を挿入しない場合では、マスクの量が増大するにつれて速応性が鈍りゆく傾向があらわれている。またカタサのプログラム目標値が加わった直後の過渡的な偏差は、ほとんど無視できることも明らかになった。

以上の実験によつて、制御対象の非対称な特性、非線形性、パラメータ変動などの影響を明確にすることができ、また各種の補償要素や自動ゲイン調整器などの制御効果をも吟味することができた。そして、その結果、筆者の設計した制御系は、いずれも満足すべき応答を示しており、回分式真空結晶釜の制御系としての妥当性と合理性を明らかにすることができた。



- (註) 1. $R_z, R_x, \text{蒸気流量系, 制御対象 } C_4$ などは図8-5-9参照のこと
 2. \boxtimes : 掛算器, \boxdiv : 割算器

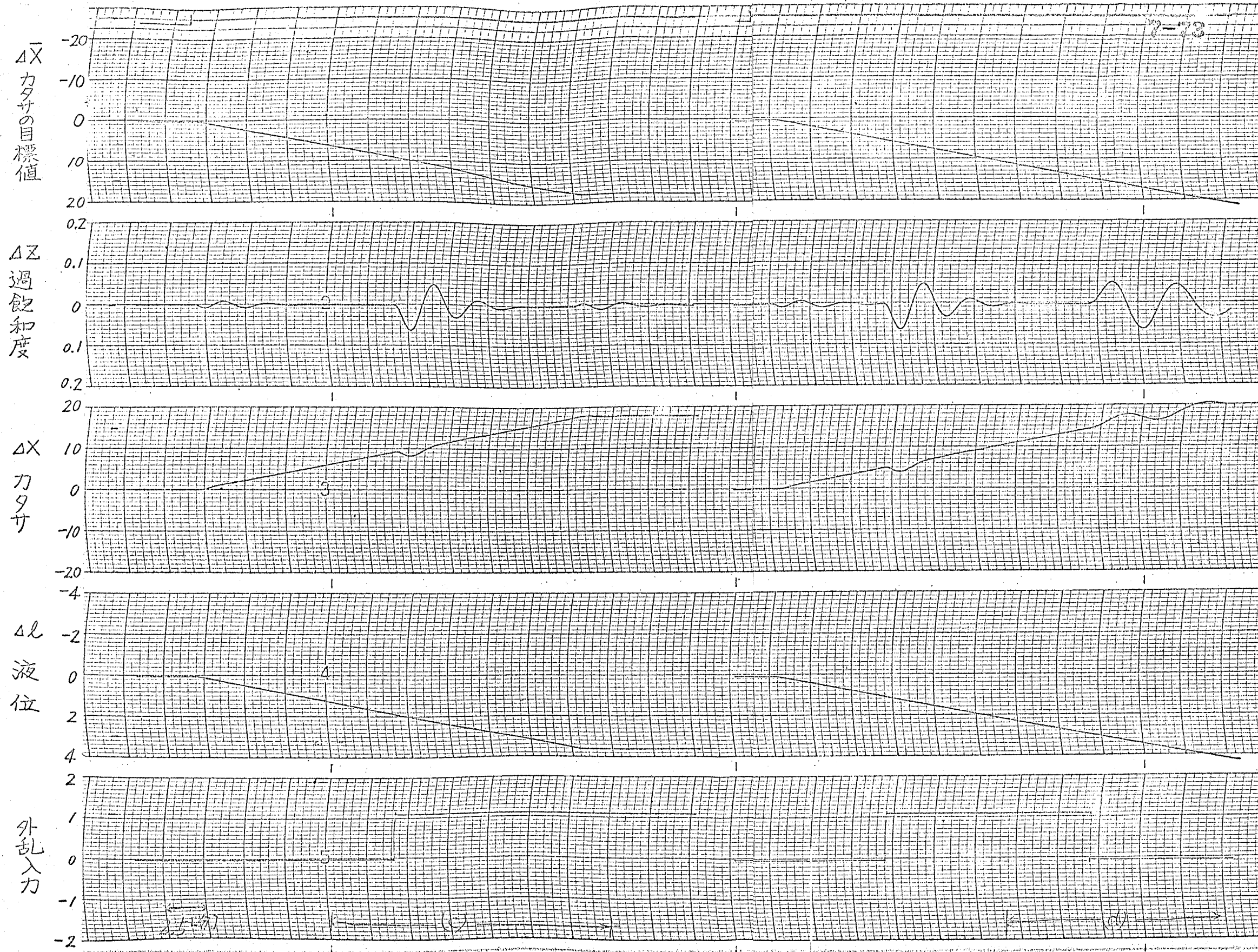
図 7-3-11 育晶期③の応答 (AGCの検討)



(a) 速度状のカタサ目標値
に対する応答
(外乱なし)

(b) 外乱に対する応答
($\Delta L = 1$)

図7-3-12 育晶期③の応答 (AGCの検討)



(c) 外乱に対する応答 ($\Delta l = 2$) (d) AGCのない場合の外乱に対する応答 ($\Delta l = 3$)

図 7-3-12 育晶期③の応答 (AGCの検討) (つづき)

要約

回分式真空結晶缶の自動制御系の設計に先立って図7-0に示す制御領域と操作線を明示し、さらに、次の2つの予備考察を行なった。

ヤ一は最適なカタサのプログラム目標値を決定する問題であり、ヤニはこの最適プログラムを用いたときの最適制御問題である。本章の考察によってカタサの制御系設計に重要な指針を与えることができた。

ヤ一の問題、すなわちカタサの最適プログラムの決定問題は、ここでは微視的な立場から、結晶粒子まわりの濃度分布を考察することによってはじめて合理的に解明した。カタサの最適操業基準は、偽晶発生抑制と結晶成長速度の促進という条件を採用した。その結果、最適な結晶粒子間の距離は(7-1.9)式で示される面間距離から定めるべきであることが分かったので、これを用いて時間的に増大するカタサの最適なプログラム(7-1.13)式を決定することができた。この結論は、従来の操業方式のうちで、時間按比例にカタサを増大させるという方式にもっとも近いことが明らかになった。

ヤニの問題、すなわちカタサの最適制御問題は、さきに求めたカタサのプログラムを目標値とする制御系に関して考察した。最適性の評価基準として(7-2.1)式に示したような制御面積と操作面積の和の最小化を考えた。これは制御偏差と母液注入量の積分値を最小化することに対応している。まず、動的計画法によって理論的な最適制御系を求めた。(図7-2.2) この制御系は本質的に比例動作を含んでおり、また制御面積と操作面積との間の相対的な重みづけの仕方によって応答が大きく影響されることを明らかにした。この理想的な最適制御系の真価を明確にするため、実際的な見地から選んだ2種類の制御系—比例調節器、比例-積分調節器を用いた通常の制御系—と比較吟味した。その結果、上述の評価基準に従うかぎり比例-積分調節器を用いた制御系の制御効果は図7-2.7で示すように最適制御系に次ぐことが明らかになった。

以上に述べた最適操業に関する考察を軸として、筆者の考えのもとで回分式真空結晶缶の自動制御系を設計することができた。この自動制御系は、回分式の多変数系プロセスとしての顕著な特性を考慮した合理的な制御系であると同時に、工業的なプロセス調節器を用いて構成できる実現性の高い制御系でもある。

まず、制御対象としての特徴は次の3点にあることを指摘した。
すなわち、

- ① 相互干渉を含む多変数系であること。
 - ② 各制御量には各操作期間ごとにそれぞれ重要性に差異があること。
 - ③ 回分式プロセス特有の大きなパラメータ変化が無視できないこと。
- 以上の特徴点をもとに、本題の制御系設計に関する次のような筆者の具体的な設計方針を立てた。すなわち、

- ① 重要な制御量についてのみ非干渉補償を行なう。ただし、実現性の観点から、必ずしもいわゆる完全非干渉補償系を目指すことは考えない。
- ② 回分式プロセスにおいて避けられない制御対象の特性変動に適応できる制御系を設計する。ただし、適応性の基準として、ここでは系の安定度を一定に保つという評価をとることにする。
- ③ 制御系の構成要素とりわけ調節器は原則として工業用のプロセス調節器を用いるか、もしくは、それに多少の改良を加えたものにとどめる。

制御系の設計に先だって、制御対象の顕著な特性と筆者の設計方針に関連する二つの重要な問題を予備的に考察した。その結果、次のような有用な結論を得た。

- a. 制御対象のパラメータ変動と外乱をとともに補償する有効な制御系の一つとして、図7-3.4(b)に示す制御系を得た。
(この結論は、自立補償法を用いて導いた)
- b. 制御対象のパラメータ変動を積極的に補償するために、自動ゲイン調整による適応制御系を提示した。(図7-3.6)

以上の結論を総合して、回分式真空結晶缶の自動制御系を設計した。この制御系は起晶期(図7-3.9)と育晶期(図7-3.10)とに分けて設計したが、両制御系は、二つの補償要素を切り換えれば他は共通的な要素と回路で構成することができる。なお、濃縮期および煎き締め期の制御系は缶内真空度だけの単純な制御系であるから上記のものに含まれている。

このようにして構成した制御系が筆者の設計方針どおりの応答を示すかどうかを検証するため、アナログ計算機を用いてこの制御系のシミュレータを作り、実験を行なった。この実験は、制御対象の非対称な特性、非線形性、パラメータ変動などの影響を明確にし、また各種の補償要素や自動ゲイン調整器などの効果を吟味することを主眼として行なった。その結果筆者の設計した制御系は、いずれも満足すべき応答を示しており、回分式真空結晶缶の制御系としての妥当性と合理性を明らかにすることができた。

8. 結 論

本章では本論文の概観を与えるために、本研究の工学的意義を述べ、
ついで本研究で得た結論を総括する。

8-1 本研究の工学的意義

単位操作としての結晶化プロセスは一種の固形物分離操作に属している。しかしこの分離操作は、物質形態のほかでも純粋な結晶という形で分離するため、物理的にも化学的にも未知の現象を多分に含んでいるきわめてデリケートな操作である、と言えよう。またこの分離操作は、物質をむしろ純度の高い固形状で母液から分離することができる操作であるから、たいがいの場合、中間製品もしくは最終製品を作り出す最終工程に位置している。したがって、一般に結晶化プロセスの操業には高度の技術が要求されており、しかもこのプロセスが製品の品質を大きく左右している、というのが昨今の装置工業における通例となっている。

さて、プロセス制御の急速な進展にともない、化学工場の制御および自動化はすでに集中制御もしくは集中管理の段階に入っている。そして一部の化学工業においては、大形の電子計算機を導入したいわゆるコンピュータ・コントロールなどの技術を用いて、さらに高次の集中制御を実施しようとする勢にある。これらの大規模な制御方式を行なうためには、当然その基盤として、工場内のすべての単位装置がそれぞれ独立に制御できるという条件が満たされていなければならない。近年に至って、ほとんどの化学装置の制御が可能になり、上述のような高度な集中制御を実施する条件を満たしつつあるが、結晶装置ほかでも回分式の結晶装置の制御は今までほとんど研究されていなかったため、結晶プロセスを全

化学工場の集中的な制御と自動化はいちじるしく遅れているのが現状である。

本題の回分式真空結晶缶は結晶装置として歴史的にもっとも古くから重用されてきた装置であり、とくに食品工業において大規模に用いられてきた。そして最近では種々の改良が加えられ、その結果、化学工業全般において大容量の重要な結晶装置として広く使用されている。また、この回分式真空結晶缶は製品としての結晶品質をとくに重要視する場合においてはほとんど唯一不可欠の装置形式であると思われており、しかも将来このような現在の評価が低下することは必ず考えられたい。

ゆえに本研究によつて、回分式真空結晶缶そのものの制御と自動化が可能になるばかりではなく、ひいてはこの結晶缶を用いる化学工場全体の総合的で高度な集中制御と全自動化を実施するための大きな可能性を与える意義を併せ持っていることは明らかである。

8-2 本研究の結論の総括

本研究は回分式真空結晶缶の制御工学的な特性およびその自動制御系に関する研究を行なったものである。本論文の内容は、(A)制御対象としての回分式真空結晶缶の考察、(B)その特性の解析と実験、(C)自動制御系の設計の3つの部分に大別できる。

以下にこれらの分類にしたがって、その内容のありましと得られた結論について概説する。

(A)“制御対象としての考察”は1, 2, 3章がこれに当る。

第1章序論では回分式真空結晶プロセスの一般的装置構成を概説し、そのプロセスとしての制御工学的な特異性に関する筆者の見解を述べ、さらに本研究の目的と制御工学的な意義を論じた。以下にその内容を概説する。

1-1節では、化学工場内における結晶化工程を中心とした前後の工程図(図1-1-1)を示して結晶化工程の工場内での位置づけを行ない、また回分式真空結晶缶工程そのものは、結晶缶本体、排気系統、原料供給装置からなることを示した。(図1-1-2)。

1-2節では、回分式真空結晶缶プロセスの制御工学的な特異性についての筆者の見解を次の3点に集約して示した。すなわち

- ① 結晶缶は3相共存系の熱力学的に非平衡なプロセスであること、
- ② 満足な制御を行なうためには、特異な制御量を選ぼうを得ないこと、
- ③ 回分式プロセスであるから、各操作期間ごとに特性が変化可能。したがって各操作期間ごとに制御方法を変えねばならないこと。

1-3節では、回分式結晶缶の運転が、手動運転の場合ほりろんのこと、自動運転の場合ですら、つねに熟練作業者の勘に大きく依存して運転されている現状を指摘した。そしてその大きな原因の一つが制御量の選定問題、すなわち回分式結晶缶のどのような量を何箇制御すれば必要かつ充分であるかという点にあることを論じ、これが第3章に述べる「プロセス自由度の算定」という基本的な研究につなげることを述べた。また、本題の回分式結晶缶が連続式結晶缶にくらべて、ややもすれば研究する価値が乏しいと見られがちな点についても論及し、回分式結晶缶が工学的にも工業的にも、むしろ研究価値の高いことを強調した。すなわち、粗雑な結晶化による単純な固形

分離プロセスとして用いる場合には、結晶缶の連続化は可能であるけれども、高品位で商品価値の高い結晶製品を得るためには、結晶缶の連続化は原理的にも経済的にも不可能に近い場合がきわめて多いことを詳論し、藤田らの最近の客観的データで裏づけつつ、回分式結晶缶研究の有用性を立証した。

第2章は回分式真空結晶缶の特性と制御に関する基礎的事項に対する準備的考察である。すなわち：

2-1節では回分式結晶プロセスのシーケンスの設定を行なった。このシーケンスは図2-1・2に示す6期の操作期間すなわち、準備、濃縮、起晶、育晶、煎き締め、排出・洗滌の操作期間からなっている。ここで、起晶期と育晶期は、操業という立場から、往々にして同一期間として扱われていたが、制御と自動化の立場から考えて、ここでは明確に別々の期間として扱うべきであるとの結論に至った。さて、このうち制御を要する期間は言うまでもなく濃縮、起晶、育晶、煎き締めの4期間である。

2-2節では、あらかじめ第3章の結論を用いて、これらの制御を要する期間でとるべき制御量および操作量の数と種類を合理的に選定し、表2-2・1にまとめた。さらに、制御量にはそれぞれ各期間ごとに重要度の差異があること、およびこの差異が制御系の構成方法に大きく作用することを述べた。

第3章では、制御のために必要充分な制御量の個数に対応するプロセス自由度の問題について、筆者の新しい算定法を提示し、これを回分式結晶缶の場合に適用して、制御量の合理的な個数を算出した。筆者の導いた新しいプロセス自由度算定法は、結晶缶に限らず、非平衡性の強いプロセスに適用できる基本的なものと考えられる。

3-1節ではプロセス自由度が制御量の個数を決定する唯一の合理的な概念であること、および本プロセスを本質的に非平衡系と見なければならぬこと、これを強調し、筆者のプロセス自由度算定法を導く立場を明らかにした。また、プロセスを連続式、半回分式、完全回分式に分類してその特性を熱力学的な概念と対応させた。(表3-1・1)。本題のプロセスは厳密には半回分式プロセスであるから、その自由度は部分定常性のとり方、すなわち定値制御を要する制御量の個数を考慮しなければ定まらないことを述べた。

3-2節ではGibbsの相律に基礎をおく従来のプロセス自由度算定法の不成立な例を指摘し、非平衡熱力学を用いて、(3-2・6)式に示す新しい一

般性のあるプロセス自由度の算定式を導くことができた。この算定法は原理的には平衡仮定にもとづく算定法を包含する かなり 基本的なものであることを、種々の例を用いて明らかにした。

3-3節では筆者のこの一般的な算定法を本題の回分式真空結晶缶に適用して、各期の合理的な制御量の数を算出した。すなわち、回分式結晶缶の理論的なプロセス自由度を算定したのち、操業内容を考慮した条件付きのプロセス自由度を求めた。(表3-3-1)。そして筆者は制御量の数としてこの条件付きプロセス自由度を採用すれば かなり 満足な制御ができることを論じた。

(B)特性の解析と実験は4,5,6章がこれに当る。ここで言う特性とは、制御と自動化のために必要とされる定常特性(静特性とも言う)および動特性(非定常特性とも言う)を指しており、したがってあくまでも制御工学の立場からの特性を意味している。

第4章は上述の意味での回分式真空結晶缶の定常特性と動特性を解析したものである。特性解析は濃縮、起晶、育晶の各操作期間について行ない、それぞれ4-1節、4-2節、4-3節に詳述した。煎き締の期の特性は濃縮期および育晶期のほかを含めて取り扱うことができるので4-1節および4-3節で扱った。本章の解析により、実験結果と合致する実用性の高い特性をはじめで導くことができた。

さて4-1節「濃縮期における特性」では、まず重要な操作要素としての排気系統の特性を論じた。すなわち、混合凝縮器と真空ポンプの直列系統によって真空結晶缶内を排気するときの排気特性を論じ、(4-1-18)式の動特性を得た。しかしこのような排気系統を操作要素として用いるには装置的にある限界があることを指摘し、これに代る要素として缶外から空気を吸入する方式を提案し、その特性を示した。この方式の特長は、応答速度が早いこと、動作が確実なこと、および設備費が低廉ですむことなどである。4-1-2項ではこれら2種類の排気系統を用いたときの缶内真空度の応答を扱った。また缶内真空度の制御が等価的に母液の沸騰温度の制御に行っている機構を述べ、そのときの特性を4-1-3項に示した。ここではこのような機構を一般的に沸騰プロセスと名付けてその動特性の解析を試みた。過渡的な沸騰現象には未だ未解決の問題が多く、その一般的な取扱いが困難であるから、筆者は結晶缶内部の現象に限定して、実験結果を十分に説明できる理論を立てた。すなわち、過渡的な沸騰蒸発速度を記述するため、新しく沸騰係数

という概念を導入して解析を行ない、液温度の過渡応答は(4-1.29)式、表4-1.2に示したような非対称一次おくれ特性をもつことを示した。4-1.4項は過飽和度の特性、すなわち濃縮が進行するにつれて液の過飽和度かどのように上昇するかを述べた。

さて、つづく4-2節は起晶期の特性について論じたものである。ここでは4-2.1項で起晶期の基礎式を系統的に述べ、4-2.2項では起晶期の定常特性を総括して扱った。すなわち、結晶の定常成長速度、液位の変化、加熱速度を含む定常関係式、カタサの変化、などである。4-2.3項では起晶期におけるもう一つの制御量である過飽和度の動特性を解析した。(4-2.34)式。この過飽和度の動特性は、加熱蒸気流量、温水流量の操作量については積分性を持ち、缶内真空度の操作量については一次おくれ特性をもっている。

4-3節では育晶期および煎き締め期の特性を一括して取扱った。育晶期は回分式真空結晶缶の中心的かつ重要な操作期間であるから、まず、その制御工学的な考察を4-3.1項で行なった。すなわち、育晶期を特徴づけている操作はいわゆる煎き上げ操作であり、またマスクットをできるだけ固く煎くという従来の操業方針は制御の立場から妥当であることなど、筆者の見解を明らかにした。育晶期の基礎式を4-3.2項に示し、4-3.3項で定常特性を解析した。ここで求めた定常関係式は結晶成長速度、液位の変化、加熱速度、などである。4-3.4項においては、育晶期を特徴づけるカタサという制御量について色々の角度から考察を加え、その特性を述べた。すなわち、マスクットの容積との関係、カタサを一定にするための条件、煎き締めを行なったときおよび水煎きを行なったときのカタサ変化特性などである。動特性は過飽和度とカタサについて解析を行ない、4-3.5項に示した。その結果、カタサは加熱蒸気と母液注入に対してそれぞれおくれを伴った積分特性を有していることが明らかとなった。(4-3.53)式。

以上で求めた回分式真空結晶缶の特性を4-4節で総括した。ほかに制御系設計にとって重要な動特性については(4-4.1)、(4-4.2)式のようなマトリクス表示を用いて示し、また、その詳細はブロック線図を図4-4.1、図4-4.2で与えた。

第5章では前章で解析した特性を実験的に検証した。筆者の用いた実験装置は蔗糖の精製工場で見られている大形規模の回分式真空結晶缶である。実験結果による検討は5-1.2項「定常特性」と5-1.3項

「動特性」とに分けて行ない、筆者の解析した特性が充分な精度をもって成立する妥当なものであることが検証できた。ただしこの中で沸騰プロセスに属する特性、すなわち缶内真空度に対する液温度の動特性はこの実験装置によつては明らかにはできなかったので、5-2節に述べる別の実験装置を用いて行なった。沸騰プロセスのこの実験装置は内容積約4Lのモデル結晶缶を用いて構成し、実操業範囲内の水および蔗糖溶液について行なった。その結果、4-1.3項で述べた筆者の解析結果の検証を行なうことができた。

才6章では、結晶の仕上り品質と操業能率に重大な影響を及ぼすマスクットの循環速度に着目してその特性を解析し、実験的検証を行ない、さらに各種の操業方法に対する循環特性の比較検討を行なった。まず問題点を明確にするため、循環速度の低下に伴う弊害は次の3点にあることを要約した。

- ① 偽晶が発生し、粒度のばらつきが大きくなる。
- ② 結晶成長速度が低下する。
- ③ 双晶、塊晶などが生成する。

これらの従来の説を“むら”という概念で統一的に説明できることを指摘し、表6-1.1に図式的に示した。6-2節ではマスクットの循環速度を理論的に解析して(6-2.11)式の理論式を求め、これを6-3節で実験的に検証した。その結果、育晶期における急激なカタサの増大、循環速度の低下、伝熱速度の減少などの機構が明らかとなり、起晶期と育晶期では循環の機構に質的な差があることが明確にできた。

(C) 自動制御系の設計は7章がこれに当る。

才7章ではカタサという特異な制御量をさらに深く考察することによって、まず7-1節でカタサ目標値の最適なプログラムを決定する問題を扱い、さらに7-2節において、その最適プログラムのもとでの制御系の問題を論じた。

7-1節で得た結論は、カタサ目標値は時間にほぼ比例して増大するプログラムで与えるのが最も適切である、ということである。この結論は偽晶発生速度を最小にし、かつ結晶成長速度を最大にするという評価基準から理論的に導いたものである。

7-2節は、この結論にしたがってカタサのプログラム制御を行なった場合、制御偏差と操作量の自乗和の積分値を最小にするような最適制御系を論じたものである。筆者はまず、制御要素に拘束を設けずに動的計画法を用いて理論的に考察した結果、図7-2.2に示す理想的な制御系を得るこ

とができた。そこで通常の設計方針によって常用のプロセス調節器によるカ7サのP-制御系およびPI-制御系を別に設定し、これら3者の上記の評価による比較検討を行なった。その結果、制御系のループゲインを充分高くとることによって、PI-制御系は理論的に求めた理想的な最適制御系に近い性能をもつことが明らかになった。

7-3節ではこれまでに求めたすべての回分式真空結晶缶の制御対象としての特性を用いて、制御系の理論的な検討を行ない、常用のプロセス調節器を主体とする実現性の高い合理的な制御系の設計を行ない、アナログ計算機を用いたシミュレーターによって筆者の設計した自動制御系の実現性と有用性を検証した。

まず制御対象の特徴は次の3点に集約できることを示した。

- ① 相互干渉を含む多変数系である。
- ② 制御量には各操作期間ごとに重要度の差異がある。
- ③ 育晶期におけるプロセスのパラメータ変化が無視できない。

そこでこれらの特徴に適した制御系の一般的な特質を検討した結果、ここでは次のような具体的な設計方針を立てるに至った。

- ① 重要な制御量についてのみ非干渉補償を行う。
- ② パラメータ変動に適応できる制御系を設計する。
- ③ 常用されている工業用のプロセス調節器を用いる。

以上の方針にもとづいて設計した制御系を図7-3-9および図7-3-10に示した。

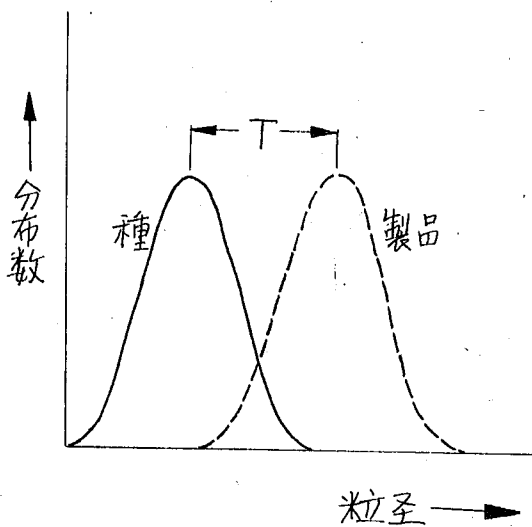
つぎにこの制御系の応答を確かめるため、アナログ計算機を用いてこの制御系のシミュレーターを作り、これによって種々の角度から検討を加え、応答の吟味を行なった。その結果、この制御系の実用性と有用性を検証することができた。

以上によって、回分式真空結晶缶の特性を解明し、その合理的かつ実用的な制御系を設計することができた。なお巻末に附録、使用単位表、引用文献、用語集、記号集などを付記した。

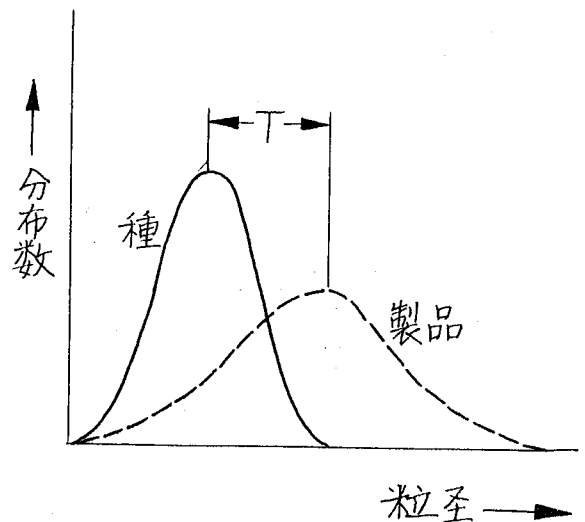
附録(1-1) 回分式結晶缶の特徴について

回分式の結晶缶は概して良品質の結晶を収率よく得ることができる特徴をもっている。そして、次のような場合は原理的に連続式の結晶缶を用いることができない。

- ① 仕上り製品の粒度品質が重要視され、できるだけばらつきの少くない製品を得たい場合。——連続式結晶缶では附図1に示すように、原理的に操作時間に比例して結晶粒度のばらつきが増大してゆく。これに反して、回分式結晶缶ではこのような現象は見られないから、種入れさえ十分に管理すればばらつきを小さく押えることが可能である。
- ② 結晶成長時間が長い場合。——連続式結晶缶では結晶の滞留時間がある限度以上に長くすることは困難である。



(a) 回分式結晶缶の場合



(b) 連続式結晶缶の場合
(槽式完全混合とする)

附図1 回分式と連続式の結晶缶における
粒度ばらつきの比較(同じ時間Tが至過したときの例)

附録(4-1) (4-1.17), (4-1.18) 式の誘導

(4-1.15) 式を定常近似傍で線形化すると,

$$\left\{ \bar{Q} \beta e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2}^{\circ} - \bar{\theta}_{m2})} + C_m S \right\} \Delta \theta_{m2} = \bar{Q} \beta e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2}^{\circ} - \bar{\theta}_{m2})} \cdot k_{op} \Delta p_s$$

$$\therefore \left\{ 1 + \frac{C_m}{\bar{Q} \beta e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2}^{\circ} - \bar{\theta}_{m2})}} S \right\} \Delta \theta_{m2} = k_{op} \Delta p_s \quad (1)$$

(4-1.16) 式も同様に

$$\left\{ \bar{F} + \bar{V}_s S \right\} \Delta p_s = \frac{\bar{Q} \cdot k_s}{r_{m2}} \Delta \theta_{m2} - \bar{P}_{s1} k_{cs} \Delta W_{c1}$$

$$\therefore \left\{ 1 + \frac{\bar{V}_s}{\bar{F}} S \right\} \Delta p_s = \frac{\bar{Q} \cdot k_s}{\bar{F} r_{m2}} \Delta \theta_{m2} - \frac{\bar{P}_{s1} k_{cs}}{\bar{F}} \Delta W_{c1} \quad (2)$$

ただし上式の計算には

$$\bar{j}_{mw} = \bar{Q} / r_{m2}, \quad \Delta \theta_{m2}^{\circ} = k_{op} \Delta p_s$$

の関係を用いた。

つぎに、(1), (2) 式の各係数を吟味するため、筆者が実験を行なった標準的な実規模の真空結晶缶の寸法、操業条件および物性値を用いて試算を行なう。すなわち、

$$\begin{aligned} V_s &= 30 \text{ [m}^3\text{]}, \quad \bar{F} = 8.3 \times 10^4 \text{ [m}^3\text{/hr]}, \quad \bar{Q} = 2.73 \times 10^6 \text{ [Kcal/hr]}, \\ r_{m2} &= 577 \text{ [Kcal/kg]}, \quad C_m = 2.2 \times 10^4 \text{ [Kcal/}^\circ\text{C]}, \quad k_{op} = 0.013 \text{ [m}^2\text{/kg]}, \\ k_s &= 4.67 \text{ [} \frac{\text{kg} \cdot \text{m}^3}{\text{m}^2 \cdot \text{kg}} \text{/}^\circ\text{C]}, \quad \beta e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2}^{\circ} - \bar{\theta}_{m2})} = 0.1 \end{aligned}$$

その結果、(2) 式左辺の時定数項について

$$V_s / \bar{F} \approx 2 \times 10^{-4} \text{ [hr]} \ll 1 \text{ [hr]} \quad (3)$$

この(3)式は、蒸気空間 V_s にほとんど真空度のおくれが無視できるほど小さい、ということの意味している。そこで(3)式の結果を用いて省略算を行ない、(1), (2) 式から次の式を導くことができる。

$$\left\{ 1 - k_{op} k_1 + \tau_0 S \right\} \Delta \theta_{m2} = -k_{op} k_2 \Delta W_{c1} \quad (4)$$

$$\text{また、} \Delta p_s = \frac{k_2 (1 + \tau_\theta S)}{1 - k_{op} k_1 + \tau_\theta S} \Delta W_{c1} \quad (5)$$

ただし、

$$\tau_\theta = C_m / \bar{Q} \beta e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2} - \bar{\theta}_{m2})}$$

$$k_1 = \bar{Q} k_s / \bar{F} r_{m2}$$

$$k_2 = r_{m2} \bar{p}_{s1} k_{cs} / \bar{F}$$

(4), (5) 式をさらに書直して

$$\Delta \theta_{m2} = \frac{-k_b k_{op}}{k_a (1 + \frac{\tau_\theta}{k_a} S)} \Delta W_{c1} \quad (6)$$

$$\Delta p_s = \frac{-k_b (1 + \tau_\theta S)}{k_a (1 + \frac{\tau_\theta}{k_a} S)} \Delta W_{c1} \quad (7)$$

ただし、

$$\tau_\theta = C_m / \bar{Q} \beta e^{-\beta(\bar{\theta}_{m2} - \bar{\theta}_{m2})}$$

$$k_a = 1 - \frac{k_{op} \bar{Q} k_s}{\bar{F} r_{m2}}$$

$$k_b = r_{m2} \bar{p}_{s1} k_{cs} / \bar{F}$$

$$k_{op} = \Delta \theta_{m2} / \Delta p_s$$

(8)

(6), (7), (8) 式が本文中の (4-1.17), (4-1.18), (4-1.19) 式であり、
これらは母液温度 θ_{m2} と缶内真空度 p_s の伝達関数である。

附録 (4-2) (4-2.19) 式による煎糖時間の算定

筆者が実験した蔗糖の結晶プラントについて (4-2.19) 式を適用する。育晶所要時間、すなわちここでは煎糖時間を t とすると (4-2.19) 式より、

$$t = \frac{1}{K_j} (d - d_0)$$

(係数 K_j は本文参照のこと) 純糖率 98%, 温水 50°C, 過飽和度 1.35 に対する筆者の実験データによると、攪拌係数を含めた成長速度係数は、 $K_s M = 0.153 \text{ kg/m}^2 \cdot \text{hr}$ であった。結晶形を立方体と仮定し ($\alpha_s = 6, \alpha_v = 1$)、蔗糖結晶の比重量 $\rho = 1.55 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ とすると $K_j = 6.90 \times 10^{-5} \text{ m/hr}$ である。ゆえに、粒径 300 μ から 400 μ までの育晶時間は

$$\frac{0.4 - 0.3}{0.069} = 1.45 \text{ [hr]} = 105 \text{ [min]}$$

となり、これは実験結果 (約 95 分) および従来の経験値とかなりの一致を見せている。(5-1.1 (iii) 参照のこと)

附録 (4-3) (4-2.34) 式の誘導

(4-2.33) 式右辺の第 2 項は温度 θ_{m2} の関数であるから、 $\Delta C_{m2} = k_{co} \Delta \theta_{m2}$ とおく。さらに、この場合の温度 θ_{m2} は沸騰温度であるから前節 4-1.3 で述べた沸騰プロセスの結果がそのまま適用できる。すなわち (4-1.30) 式を用いると、

$$\Delta C_{m2} = \frac{k_{co} k_{ep}}{1 + \tau S} \Delta p_s \quad (1)$$

このような伝達特性によって飽和濃度 C_{m2}^0 は缶内真空度 P_s に置き換えることができる。ここで時定数 τ は表 4-1.2 に示したような値で、 τ_1, τ_2 のいずれかを用いる。

つぎに、(4-2.33)式の右辺第1項は基礎式から出発して以下のように導くことができる。まず、マスクットの全容量 $V_m \equiv A l$ は、前節(ii)で述べたように、起晶期間においては、ほとんど変化しないと見ることができる。また、結晶全容積 v_d は、マスクットに対する容積分率 ϕ_c が、未だ小さく、その過渡応答中の変化分 Δv_d は V_m と同様に無視できる。以上の考察をもとにして、基礎式(4-2.1)(4-2.3)式から

$$\frac{d}{dt} [(A l - v_d) \gamma_{m2} (1 - C_{m2})] = W_c - j_{mw}$$

が得られる。上述によって $(A l - v_d)$ に定常性を仮定すると、

$$(\bar{V}_m - v_d) S \{ (1 - \bar{C}_{m2}) \Delta \gamma_{m2} - \bar{\gamma}_{m2} \cdot \Delta C_{m2} \} = \Delta W_c - \Delta j_{mw} \quad (2)$$

(4-2.5)の定常式を変形して

$$\Delta j_{mw} = \frac{1}{\gamma_{m2}} (\Delta Q + C_1 \theta_c \Delta W_c) = \frac{1}{\gamma_{m2}} (k_g \Delta W_0 + C_1 \theta_c \Delta W_c) \quad (3)$$

したがって(2)式は、母液の比重量 γ_{m2} に対して、 $\Delta \gamma_{m2} = k_{\gamma m} \Delta C_{m2}$ の関係を用いると、

$$\begin{aligned} (\bar{V}_m - v_d) \cdot \{ \bar{\gamma}_{m2} - (1 - \bar{C}_{m2}) k_{\gamma m} \} S \Delta C_{m2} &= \Delta j_{mw} - \Delta W_c \\ &= \frac{k_g}{\gamma_{m2}} \cdot \Delta W_0 - \left(1 - \frac{C_1 \theta_c}{\gamma_{m2}}\right) \Delta W_c \quad (4) \end{aligned}$$

これが、加熱蒸気流量 W_0 および温水注入量 W_c に対する濃度 C_{m2} の動特性式である。(3)(4)式中 γ_{m2} はマスクットの蒸発潜熱、また係数 k_g は(4-2.18)式を用いると

$$k_g = h_0 - 0.6 C_1 \theta_0 - 0.4 C_1 \bar{\theta}_{m2}$$

と表わすことができる。

ゆえに、(1)、(4)式を(4-2.33)式に代入することによって、本文に示す(4-2.34)式を誘導することができた。

附録(4-4) (4-3.44)式の誘導

(4-3.43)式の右辺は2項からなっている。まず右辺第2項目は(4-1.32)式に示したように温度 θ_{m2} だけの関数であるから

$$\Delta C_{m2} = k_{co} \cdot \Delta \theta_{m2}$$

さらに、このときの温度 θ_{m2} はここではマスキットの沸騰温度であるから4-1.3節で求めた結果がそのまま適用できる。すなわち(4-1.29)式を用いると上式は

$$\Delta C_{m2} = \frac{k_{co} \cdot k_{op}}{1 + \tau S} \Delta P_s \quad (1)$$

このような伝達関数によって、飽和濃度 C_{m2} を缶内真空度 P_s に置換できる。ただし、上式の時定数 τ は表4-1.2に示したような値すなわち τ_1 、 τ_2 のいずれかをあてはめて用いるべき値を有する。

つぎに、(4-3.43)式の右辺第1項目は基礎式から次のように求めることができる。すなわち、基礎式(4-3.1)、(4-3.3)式より、

$$\frac{d}{dt} \{ (Al - v_d) \gamma_{m2} (1 - C_{m2}) \} = W_m (1 - C_{m1}) - j_{m2}$$

ここで、母液の容積 $(Al - v_d)$ は過渡応答の短い時間内では変化しないと仮定できるから、上式の微小変域内での関係式は、

$$(V_m - v_d) \{ (1 - \bar{C}_{m2}) \Delta \gamma_{m2} - \bar{\gamma}_{m2} \cdot \Delta C_{m2} \} S = (1 - C_{m1}) \Delta W_m - \Delta j_{m2} \quad (2)$$

上式の右辺第2項目を求めるため(4-3.5)式を用いる。ただし(4-3.5)式右辺の晶折発熱 j_{dr} は無視でき、また(4-3.5)式左辺におけるマスキットの熱保有量 $(Al \gamma_{m2} h_{m2})$ は母液容積と同様に過渡応答の短い時間内では変化しないと仮定できる。ゆえに

$$\begin{aligned} \Delta j_{m2} &= \frac{1}{\gamma_{m2}} (\Delta Q + h_{m1} \Delta W_m) \\ &= \frac{1}{\gamma_{m2}} (k_g \Delta W_0 + h_{m1} \Delta W_m) \quad (3) \end{aligned}$$

母液の比重量 γ_{m2} は濃度 C_{m2} だけの関数と考えて差支えないから

$$\Delta X_{m2} = k_{rm} \cdot \Delta C_{m2} \tag{4}$$

(3). (4) 式を(2)式に代入して整理すると.

$$(\bar{V}_m - \bar{V}_a) \left\{ (1 - \bar{C}_{m2}) k_{rm} - \bar{r}_{m2} \right\} \cdot S \cdot \Delta C_{m2} = \left(1 - C_{m1} - \frac{h_{m1}}{r_{m2}} \right) \Delta W_m - \frac{R_g}{r_{m2}} \cdot \Delta W_0 \tag{5}$$

ゆえに 過飽和度の動特性は (1), (5) 式を (4-3.43) 式に代入すれば本文 (4-3.44) 式のように求めることができる。

附録 (4-5) (4-3.53) 式の誘導

大規模な蔗糖用真空結晶缶の育晶初期を例にとってその規模および育晶期の操業条件を筆者の経験をもとにして、かりに次のように定める。

- マスキット容積: $A_L = 30 \text{ [m}^3\text{]}$, 缶断面積: $A = 6 \text{ [m}^2\text{]}$,
- 結晶容積: $V_a = 10 \text{ [m}^3\text{]}$, 結晶粒径: $d = 200 \mu = 2 \times 10^{-4} \text{ [m]}$
- 結晶粒子個数: $n = 2 \times 10^{11} \text{ [-]}$, 結晶粒子の体積係数
- : $\alpha_v = 1$, 結晶成長速度係数: $K_j = 0.725 \text{ [mm/hr]} = 7.25 \times 10^{-4} \text{ [m/hr]}$,
- 母液の比重量: $\bar{r}_{m2} = 1.389 \times 10^3 \text{ [kg/m}^3\text{]} (76.2^\circ \text{Bx})$.
- 過飽和度: $\Sigma = 1.2 \text{ [-]}$

これらの数値を代入して、 F_1 から F_6 までの係数を計算すると.

$$F_1 = 5.43 \times 10^5 \text{ [Kcal} \cdot \text{hr/m}^3\text{]}, \quad F_2 = 5.40 \times 10^5 \text{ [Kcal/m}^3\text{]},$$

$$F_3 = 1.50 \times 10^2 \text{ [Kcal/kg]}, \quad F_4 = 6.40 \times 10^5 \text{ [Kcal/m]},$$

$$F_5 = 1.71 \times 10^5 \text{ [Kcal/m}^3\text{]}, \quad F_6 = 5.12 \times 10^2 \text{ [Kcal/kg]}$$

また (4-3.53) 式に求めた動特性の式を上の数値を用いて計算すると.

$$\tau = 1.01 \text{ [hr]},$$

$$K_1 = 4.2 \times 10^{-5} \text{ [Kcal}^{-1}\text{]},$$

$$K_2 = 2.4 \times 10^{-2} \text{ [kg}^{-1}\text{]}.$$

また (4-3.53) 式の右辺の伝達関数は計算上では $1/(1+\tau S)S$ であるが、上に示したように、この時定数 τ の値が育晶初期ではかなり大きいので、(4-3.54) 式のようにこれを近似的に $1/\tau S^2$ として差支えないことが明らかになった。しかし、育晶期のなかば以降では、

粒径の増大と結晶容積分率の増加によって F_1 の値は大巾に減少し、時定数 τ の値は著しく小さくなり、その結果(4-3.53)式に示した動特性は事実上、一次積分性とみなした方が適當になってくる。したがって、この場合のカタサの伝達関数は(4-3.55)式のような積分特性とみなし得る。

附録(7-1) v の算出

(7-2.8)式を用いて(7-2.7)式の各項を求めると

$$\frac{\partial f}{\partial \tau} = \frac{dk_1(\tau)}{d\tau} - \frac{dk_2(\tau)}{d\tau} c + \frac{dk_3(\tau)}{d\tau} c^2$$

$$\frac{\partial f}{\partial c} = -k_2(\tau) + 2k_3(\tau)c$$

$$\left(\frac{\partial f}{\partial c}\right)^2 = k_2^2(\tau) - 4k_2(\tau)k_3(\tau)c + 4k_3^2(\tau)c^2$$

これを(7-2.7)式に代入して整理すると

$$0 = (k_p^2 \tau^2 + \frac{dk_1(\tau)}{d\tau} - \frac{k_2^2(\tau)}{4\beta K^2}) + (\frac{k_2(\tau)k_3(\tau)}{\beta K^2} - \frac{dk_2(\tau)}{d\tau} - 2k_p \tau)c$$

$$+ (1 - \frac{k_3^2(\tau)}{\beta K^2} + \frac{dk_3(\tau)}{d\tau})c^2$$

上式は変数 c のいかに拘らず成立する恒等式であるから c に関する係数項毎の 0 に等しいと置くことができる。ゆえに次の連立常微分方程式を得る。

$$\frac{dk_1(\tau)}{d\tau} = \frac{1}{4\beta K^2} k_2^2(\tau) - k_p^2 \tau^2$$

$$\frac{dk_2(\tau)}{d\tau} = \frac{1}{\beta K^2} k_2(\tau)k_3(\tau) - 2k_p \tau$$

$$\frac{dk_3(\tau)}{d\tau} = \frac{1}{\beta K^2} k_3^2(\tau) - 1$$

(7-2.2)式から明らかのように、 $F(c, v, \tau)$ が積分区間内で有限であるから $\tau = T$ において $f(c, T) = 0$ である。(7-2.8)式についてこの関数 $f(c, T) = 0$ を適用すれば

$$\tau = T \text{ において } k_1(T) = k_2(T) = k_3(T) \equiv 0$$

という初期条件を得ることができる。ゆえにこの初期条件を用いて上述の連立常微分方程式を解き、(7-2.6)式の $\frac{\partial f}{\partial c}$ を求めれば、

$$\frac{\partial f}{\partial c} = -k_2(\tau) + 2k_3(\tau)c$$

$$k_2(\tau) = 2k_p \sqrt{\beta} K \left[\tau \tanh\left(\frac{T-\tau}{\sqrt{\beta} K}\right) - \sqrt{\beta} K \left\{ \operatorname{sech}\left(\frac{T-\tau}{\sqrt{\beta} K}\right) - 1 \right\} \right]$$

$$k_3(\tau) = \sqrt{\beta} K \tanh\left(\frac{T-\tau}{\sqrt{\beta} K}\right)$$

$$\therefore v = \frac{1}{\sqrt{\beta}} \tanh\left(\frac{T-\tau}{\sqrt{\beta} K}\right) \cdot (k_p \tau - c) + k_p K \left\{ 1 - \operatorname{sech}\left(\frac{T-\tau}{\sqrt{\beta} K}\right) \right\}$$

附録(7-2) 補償要素 C_2 の決定

外乱 F_2 の加熱蒸気流量への伝達要素 K_f は比例要素であるから、補償経路の伝達要素 C_2 を $C_2 = K_f \cdot G_f$ と置いて C_2 の要素特性を求める。補償条件により

$$\left(1 - \frac{R_o R_z}{1 + R_o R_z} G_f\right) K_f \cdot F_2 = 0$$

ゆえに

$$G_f = 1 + \frac{1}{R_o R_z}$$

ここで、すでに本文②で得たように $R_o = K_r \left(1 + \frac{1}{T_I S}\right)$ とおくと

$$G_f = 1 + \frac{T_I S}{K_r R_z (1 + T_I S)} \quad (1)$$

補償を完全に行きうには(1)式の伝達関数をもつ要素が必要とされる。しかし外乱 F_2 が $1/T_I$ 以上の高周波成分を含まないならば(1)式は近似的に $G_f = 1$ と考えて差支えない。差し水の流量は緩慢に行きうることが可能であるから、このように近似は実際上許されるものである。さて一般に、流量の検出値にはかなりの高周波ノイズが含まれているのが常であるから、この影響を除くために要素 C_2 へ $1/T_I$ の折点周波数をもつ低域フィルタ一たといえば $1/(1 + T_I S)$ を挿入することが望ましい。ゆえに筆者は補償要素 C_2 として

$$C_2 = \frac{K_f}{1 + T_I S}$$

を推奨する。ここで時定数 T_I はPI調節計 R_o の積分時間に等しくともする。

附録(7-3) 調節器 R_z の決定

オーバーシュートがないという制約を満たす調節器の伝達関数は系の特性方程式を用いて検討することができる。
過飽和度制御系統の特性方程式は、

$$1 + R_z K_o \frac{K_z}{T_{wo} S} = 0 \quad (1)$$

ここで、カスケード結合された加熱蒸気の制御系は過飽和度の制御系全体の特性にあまり寄与しないと考えられるので、この伝達関数を比例要素 K_o とおいた。調節器 R_z と常用のフロース調節器のなかから選定すると、(1)式の特性方程式は

$$\left. \begin{aligned} \text{PI制御} : S^2 + \frac{K_o K_z}{T_{wo}} K_r S + \frac{K_o K_z}{T_{wo} T_I} K_r &= 0 \\ \text{PID制御} : S^2 + \frac{K_o K_z}{T_{wo} + T_D K_o K_z K_r} K_r S + \frac{K_o K_z}{(T_{wo} + T_D K_o K_z K_r) T_I} K_r &= 0 \end{aligned} \right\} (2)$$

ここで、P、PD調節計は外乱に対してオフセットを残すので省いた。またPID調節器の伝達関数を $K_r (1 + \frac{1}{T_I S} + T_D S)$ とおいた。つぎに(2)式の ζ の値を求め減衰係数を求める

$$\left. \begin{aligned} \text{PI制御} : \zeta_{PI} &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{K_o K_z T_I}{T_{wo}}} \cdot K_r \\ \text{PID制御} : \zeta_{PID} &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{K_o K_z T_I}{T_{wo} + T_D K_o K_z K_r}} \cdot K_r \end{aligned} \right\} (3)$$

周知のように(3)式において $\zeta \geq 1$ であれば制御系の応答は振動せず、したがって制御量の行き過ぎはない。そこで各々 $\zeta_{PI}, \zeta_{PID} \geq 1$ という条件を満足するように調節計のパラメータ K_r, T_I, T_D などを設定すれば目的を達成できる。しかし、(3)式から明らかのように、同じ ζ の値に対してPID調節計の方が比例ゲイン K_r の値を大きく取ることができる。したがってPID調節器を用いた方が制御系の応答は早くなり、外乱に対しても強くなる利点がある。

使用単位表

μ	マイクロン
mm	ミリメートル
m	メートル
kg	キログラム
hr	時間
min	分
kcal	キロカロリー
$^{\circ}\text{C}$	摂氏温度
$^{\circ}\text{Bx}$	ブリックス(度)
%	パーセント

第1章の引用文献

- 1) * 八幡屋, "結晶化(上)", 新化学工学講座 IV-3, 日刊工業 (1957),
 * "結晶物理学" 物性物理学講座 5, 共立出版 (1961)
 * A. Van Hook, "Crystallization-Theory and Practice", ACS
 no.152 Reinhold Publ. Corp. (1961)
 * H.E. Buckley, "Crystal Growth", John-Wiley, N.Y., (1951)
- 2) * 城塚, 八幡屋, "化学工学協会主催 第5回総合シンポジウム(4) 晶析展望(1966).
- 3) * 藤田, "化学工学の研究テーマ" 化学工学, 30, 4, p.278-281 (1966)
- 4) * 城塚, 八幡屋, *ibid* 表 1.
- 5) * 梅谷, "General Method for the Analysis of Complicated Plant
 Characteristics". Proc. IFAC., Tokyo Symposium on Systems
 Engg. for Control System Design. (1965), 6, 265-274
- 6) * I. Prigogine, "Introduction to Thermodynamics of Irreversible
 Processes", 2nd ed., Interscience Publ., N.Y., (1961)
 * D.D. Fitts, "Nonequilibrium Thermodynamics". McGraw-Hill,
 N.Y., (1962)
 * 妹尾, "不可逆過程の熱力学", 東京化学同人 (1964)
- 7) * "6th Process Control Report", Chemical Engg., June. 7.
 (1965)

- 1) * 澤井森編, "シーケンス自動制御便覧", オーム社 (1966)
- 2) * "結晶物理学"物性物理学講座 5. 第5章 P. 296-299, 共立出版(1961)
* M.Kamota, T.Yamane, " On the Formation of Conglomerates of Sucrose Crystals ", Proc. Res. Soc. Japan Sugar Ref. Tech. 8, 123-130 (1959)
- 3) * J.G. Ziegler, " Experiments in Vacuum Pan Control ". J. Am. Soc. Sugar Beet Tech., 12, 6. 462-467, (1963)
* A.L. Weber, " Good Sugar Crystal Formation ", Proc. 8th Congress ISSCT. 794-799, (1953)
- 4) * "自動制御便覧" II, 299-302, コロナ社. (1957)
- 5) * 八幡屋 "結晶化(上)", 新化学工学講座 IV-3 18-31. 日刊工業(1957)
- 6) * P.Honig, " Application of the Conductivity Method to Control the Crystallization Process and Seeding Technique ", in Principles of Sugar Technology II, 7, 250-303, Elsevier Publ. Co. (1959)
* R.C.L. Bosworth, " Determination of Heat Transmission as an Indirect Method for the Determination of the Viscosity and Supersaturation of Technical Sugar Solutions ", in *ibid.*, II, 7, 304-317,

第3章の引用文献

- 1) * 非平衡熱力学の文献参照のこと。たとえば、妹尾学, "不可逆過程の熱力学" 東京化学同人 (1964)
- 2) * E.R.Gilliland, C.E.Reed, " Degrees of Freedom in Multicomponent Absorption and Rectification Columns ". I.E.C., 34, 5, 551-557 (1942)
* M.Kwauk, " A System for Counting Variables in Separation Processes", A.I. Ch. E., 2, 2, 240-248 (1956)
- 3) * I. Prigogine, R.Defay, " Chemical Thermodynamics", Ch. XIII-1, Longmans Green Co., (1952)
- 4) * 同上 Ch.XIII-6.
- 5) * 梅谷, "不可逆過程熱力学のプロセス特性解析への応用", 日本機械学会誌, 71巻 591号 (1968-4)
* Umetani, Y., " General Method for the Analysis of Complicated Plant Characteristics", Proc. IFAC, Tokyo Symp. on Systems Engineering for Control System Design 6, 265-274 (1965)
* 梅谷, "工学系のプロセス自由度について" 生産研究, 18, 7, 24-27, (1966)
* 梅谷, "プロセス自由度の新しい算定法とその応用" 第9回自動制御連合講演会前刷, NO.175. (1966)
* 妹尾, 鈴木, 山辺, "定常状態における熱力学系の自由度について", 生産研究, 18, 7, 21-23. (1966)
- 6) * I. Prigogine, " Introduction to Thermodynamics of Irreversible Processes", 2nd ed.. Interscience Publ., N.Y., P.76, (1961)

- 7) * 沢井.森.山口.梅谷, "精製糖工場におけるオートメーション," これは名古屋精糖株式会社 新東工場建設に際して行なったものである.
- 8) * E.Delden, "Modern Boiling and its Control", Sugar J., 15, 2 (4,6), 37-39 (32-37, 35-37), (1952)
- * E.R.Eglington, "Multiloop Cascade Circuits Control in British Sugar Refinery", Control Engg., 6, 2, 79-81, (1959)
- * A.Linford, "Modern Practice in Beet Factory Instrumentation, I, II, III," Sugar, 34-38, (July.), 24-31 (Aug.), 94-99 (Sept.), (1962)
- * R.M.J.Withers, J.E.A.Rich, "Application of Simple Computers to Process Control", Int. Sugar J., Part 1,2,3., 64, 292-294, 330-332, 363-364, (1962)
- 9) * T.R.Gillet, "Control Methods and Equipment in Sugar Crystallization; in P.Honig ed., "Principles of Sugar Technology", II, Ch.6. 224-226, Elsevier Publ. Co., (1959)
- * E.R.Eglington. "Elektronische Regelgeräte in der Zuckerfabrik Wisington". Z.Zuckerind., 8, 554-556 (1958)
- 10) * G.C. Bruyn, "Vacuum Pan Control". Intern, Sugar J., 64, Dec., 356-359., (1962)
- 11) * W.F.Alewijn, P.Honig, "Technology of Sugar Crystallization", in P.Honig ed., "Principles of Sugar Technology". II, Ch.9, 318-370, Elsevier Publ., Co., (1959)

- 1) * J.C.MacDonald, T.Rodgers, "Evaporator Heat Calculation for Beet Sugar Factories", Intern. Sugar J., 49, 205, 264, (1947).
- 2) * A.L.Webre, "Multi-curtain Counter Current Condenser", Sugar. 56, 8, 29-31, (1961)
- 3) * 中島 大島, "バロメトリックコンデンサーに関する研究" 化学工学, 23, 4, 235. (1959)
* H.How, "How to Design Barometric Condensers", Chem. Engg., 63, 174-182 (1956-Feb.)
* J.H.Perry ed., "Chemical Engineers' Handbook", 3rd ed., 520-521, McGraw-Hill, (1949)
- 4) * E. Hausbrand, B.Heastie, "Evaporating, Condensing and Cooling Apparatus". 5th, ed., Elsevier Publ. Co., London, (1933)
- 5) * R.J.Ackermann, et. al., "Some Fundamental Aspects of Vaporization", ANL-6663, (1962)
- 6) * "沸騰熱伝達", 日本機械学会. (1964)
- 7) * 同上 P.71-79.
- 8) * 加賀, "裾物系白下の粘度について", 精糖技術研究会誌, 10, 27-38, (1961)
- 9) * J.C.MacDonald, T.Rodgers, ibid. P.Honig ed., "Principles of Sugar Technology". III, Elsevier Publ. Co. Ch.2, 38-82, (1963)

- 10) * F.H.C.Kelly, " The Maximum Viscosity of Masecucites",
Intern. Sugar J., 57, 59, 92-93, (1959)
- * F.H.C.Kelly, " Viscosity of Crystal Suspensions".
Sharkara 1, 37-45, (1958)
- * A.Van Hook, " The Place of Viscosity in Sugar Boiling
and Crystallizing". Sugar J., 14, 8, 9-10. (1952)
- * H.Breitung, " Über die Viskosität Technischer
Zuckerlösungen". Z.Zuckerind., 6, 4, (185-193),
5 (254-260). (1956)
- 11) * 加賀, ibid.
- 12) * P.Honig, " Principles of Sugar Technology". II, Ch.13.
490-498, Elsevier Publ. Co., (1959).
- 13) * 奥田, "懸濁液および泥しょうの粘度について", 化学工学, 25, 5,
334-340 (1961)
- 14) * P.Honig, ibid. Chap.2. P.90
- 15) * 奥田, ibid.
- 16) * 梅谷、森, "精糖用真空結晶缶の特性と制御," 計測と制御,
6, 11, 1-11, (1967).

第5章の引用文献

- 1) * 化学工学便覧, 5, P.335, 丸善 (1958)
- 2) * Taylor Instruments Co., "SK No.14270, Taylor Consistency Probe".
- 3) * A.L.Holven, "Supersaturation in Sugar Boiling Operations". I E C., 34, 10, 1234-1240. (1942)
- 4) * A.Van Hook, A.J.Bruno, "Nucleation and Growth in Sucrose Solutions". Disc. Faraday Soc., 5, 55, 112-117 (1949)
* A.Van Hook, "Crystallization - Theory and Practice", Reinhold Publ. Corp., ACS Monograph no.152, (1961)
- 5) * 加賀, "糖物系白下の粘度について", 精糖技術研究会誌, 10, 27-38, (1961)
- 6) * 森, 乙竹, "懸濁液の粘度について", 化学工学, 20, 9, 488-494 (1956)
- 7) * 今上
- 8) * 奥田, "懸濁液および泥しょうの粘度について", 化学工学, 25, 5, 334-340 (1961)
- 9) * 伝熱工学資料, P193, 213 日本機械学会 (1962)

第6章の引用文献

- 1) * A.L. Webre, " Natural and Mechanical Circulation in Vacuum Pans with Performance Data and Tests". Ch.6. in " Principles of Sugar Technology". Elsevier Publ. Co., (1959)
 - * E. Hugot, G.H. Jenkins, " Circulation in Vacuum Pans". 10th Congres, ISSCT, 232-241. (1959)
 - * W.T. Abercrombie. Jr., " Economic Value of Mechanical Circulation in Vacuum Pans". Sugar J., 22, 2, 16-17, (1959, July.)
- 2) * A. Van Hook, A.J. Bruns, " Nucleation and Growth in Sucrose Solutions". Disc. Faraday Soc., 5, 55, 112-117. (1949)
- 3) * A.L. Webre, " The High Speed Vacuum Pan". Sugar, 56, 12, 37-40 (1961)
 - * A. de Kryger, " " Segura" High-Speed Vacuum Pan". Sugar, 58, 2, 20-21, (1963)
- 4) * 化学工学便覧. 5 4, P. 332-337, 丸善 (1950)
- 5) * 永田, " 攪拌機の所要動力" 新化学工学講座 VII-2, 日刊工業 (1957)
- 6) * F.W. Dittus の式, 伝熱工学資料. P. 27. 日本機械学会 (1961)
- 7) * W.L. Badger " Evaporation". sec.7. in " Chemical Engrs' Handbook". J.H. Perry ed., 3rd ed., McGraw-Hill, (1950)
- 8) * W.F. Alewijn, P. Honig, " Technology of Sugar Crystallization". Ch.9. in " Principles of Sugar Technology, II,". P. Honig ed. Elsevier Publ. Co., (1959)
- 9) * W.F. Alewijn, P. Honig, *ibid*, P341.

第7章の引用文献

- 1) * A. Van Hook, " Kinetics of Crystallization Growth of Crystals", Ch.4, in P.Honig ed., " Principles of Sugar Tech., II ", p.164-167, Elsevier Publ. Co., (1959)
- 2) * G.V.Genie, " Theoretical Consideration on Sugar Boiling. I, II, III," Int. Sugar J., 64, 232-236, 260-264, 295-300, (1962)
- 3) * R.Bellman, " Dynamic Programming", p.83, Princeton Univ. Press, (1959)
- 4) * C.W.Merriam III, " Optimization Theory and the Design of Feedback Control Systems", 5-4, p.97-101, McGraw-Hill. (1964)
- 5) * "最適制御の応用における問題点シンポジウム" 計測と制御. 5, 11, P.831~838 (1966)
* 増淵 "最適制御入門". 1, 2章. オーム社. (1964)
- 6) * 高橋 "自動制御理論" (改訂版) P.127-135. 岩波全書 199. (1959).
- 7) * 梅谷, "干渉除去要素を含む多変数制御系の解析" 第29回自動制御連合大会前刷集 NO.141. (1959)
- 8) * E. Mishkin, Braun Jr., "Adaptive Control Systems", Ch.4, McGraw-Hill. (1961)
- 9) * P.C Gregory ed., "Proc. Self-adaptive Flight Control Systems", WADC Tech. Rept., 59-49, (1959)
- 10) * M.D.Mesarovic', "Foundations of a Multivariable Control Theory", M.I.T. Tech. Press, Wiley and Sons, (1960)
* M.D.Mesarovic', "Control of Multivariable Systems", Automatic and Remote Control, 1st, IFAC Congress, 1, p.100-105, Butlerworths (1961) に多種の実例がある.

- * H.K. Chatterjee, "Multivariable Process Control",
ibid., p.132-141.
- * D.S. Mitchell, C.R. Webb, "A Study of Interaction in a
Multi-loop Control System", ibid., p.142-152
- 11) * V.S. Kulebakin, "The Theory of Invariance of Regulating
and Control Systems", Automatic and Remote Control,
Proc. 1st IFAC Congress, 1., p.106-116, (1961)
- * B.N. Petrov, " The Invariance Principle and the
Condition for its Application During the Calculation of
Linear and Nonlinear Systems", ibid, p.117-125.

用語集

本論文の中で精糖技術に関する術語ないし専門用語を用いた。以下にその主な用語を説明する。なお、末尾に蔗糖溶液に関するモ/グラムを添えた。

A. 装置に関するもの

NO	用語	説明
1	真空結晶缶 (vacuum pan)	減圧下で溶液から溶質分を結晶分離させる装置。
2	カランドリア結晶缶 (calandria pan)	カランドリア加熱部をもつ結晶缶
3	ダウンテーク (down-take)	カランドリア加熱部の中央部を指す。溶液やマスクットは、ここを通過して下降し循環する。
4	混合凝縮器 (mixing condenser)	冷却水と蒸気とを直接接触させて蒸気を凝縮させる装置。
5	テールパイプ (tail pipe)	大気脚

B. 結晶に関するもの

NO	用語	説明
1	精製糖 (refined sugar)	原料糖を溶解して不純物を除き、脱色したのち再び結晶化させた高品位の砂糖

2	蔗糖 (cane sugar, sucrose, saccharose)	サトウキビからとった砂糖, 甘蔗糖.
3	双目 (hard sugar)	サラメ. 結晶まわりにビスコ(転化糖液)を かけない砂糖. グラニュー糖や三温糖などが これに属する.
4	車糖 (soft sugar)	結晶まわりにビスコ(転化糖液)をかけて 湿り気を与えた砂糖. 上白糖などがこれに属する.
5	グラニュー糖 (granulated sugar)	高品位の双目糖.
6	上白糖 (high grade white sugar)	高品位の車糖.
7	裾物糖 (low grade sugar)	不純物の多い低品位の糖蜜から結晶 させた製品糖.
8	くっつき (agglomerate, conglomerate)	数個の結晶粒子が塊状になったもの. 塊晶.
9	双晶 (twin crystal)	2個の結晶がくっつきあっている一種の 塊晶.
10	偽晶 (false grain)	育晶途中で自然起晶した結晶.
11	白下 (fillmass)	マスケットと同義
12	リカー, ファインリカー (fine liquor)	精製し脱色された純度の高い糖液

13	マスキット (massecuite)	溶液とその結晶粒子の懸濁液。
14	母液 (mother liquor)	結晶を析出させるための原液

C. 操作に関するもの

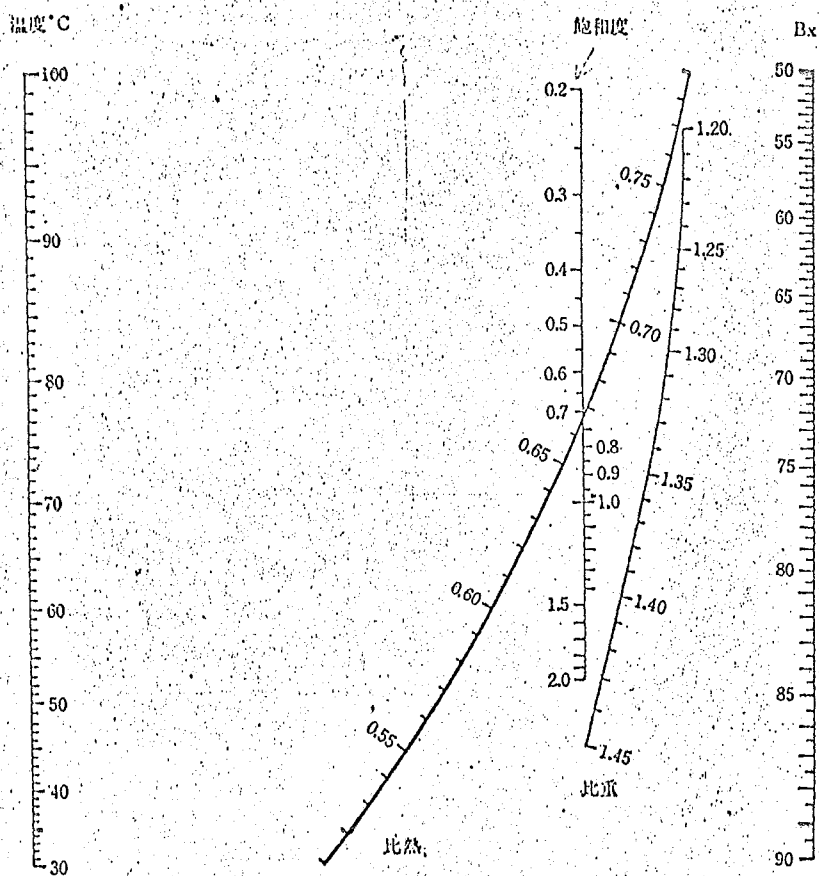
NO	用語	説明
1	煎糖 (sugar boiling)	結晶缶を用いて糖液から砂糖結晶を分離する操作。
2	煎き締め (hardening)	外部から注液を行なわずにマスキットを濃縮しかたくする操作。
3	吸込み (footing)	回分式真空結晶缶の操業開始時に母液を規定量だけ充填すること。
4	過飽和度 (degree of supersaturation)	過飽和溶液と同じ温度・圧力における飽和溶液との濃度比。
5	起晶 (seeding)	目起し。種入れとも言う。
6	不安定域 (labile zone)	自然に種晶が析出する過飽和濃度域。蔗糖溶液では過飽和度が1.5以上がこれに相当する。
7	洗缶 (sweetening off)	温水もしくは蒸気を用いて結晶缶内を洗滌すること。

8	自己蒸発 (self-evaporation)	外部から熱の供給を受けず自らの潜熱 によって蒸発を行なうこと。
9	ブリックス (Brix)	固形分のパーセント濃度
10	沸点上昇 (boiling point elevation, BPE)	溶液の沸点は一般にその溶媒の沸点 よりも高い現象を言う。

D. その他

NO	用語	説明
1	ICUMSA (International Comission for Uniform Method of Sugar Analysis)	国際砂糖分析統一委員会

付表 蔗糖溶液の比重，比熱，飽和度，過飽和度のモノグラム*



* Oliver Lyle : Technology for Sugar Refinery Workers, Chapman & Hall, London, 469 (1950)

記号表

添記号は別紙参照

記号	説明	単位	使用した章
A	マスケットまたは液の蒸発表面積	m^2	3
A ₀	カラドリヤの伝熱面積	m^2	6
a	カラドリヤ管の液通過断面積, 式(6-4.2)式を導入した定数	m^2	6
a _d	マスケット中の結晶粒子の総表面積	m^2	4
b	(6-4.2)式を導入した定数	—	6
C	液の熱当量	kcal/°C	4
C _m	マスケットの熱当量	kcal/°C	4
C	物質成分の個数, または	—	3
C	時刻tにおけるカサキの値	—	7
C ₁	水の比熱	kcal/kg°C	4
C _l	結晶面向の限界距離	m	7
C _m	溶液濃度	Kg.solt / Kg.solu. ^(*)	4
C _{m1}	注入母液の濃度	"	4
C _{m2}	結晶内への母液濃度	"	4
\tilde{C}_{m2}	結晶内への母液濃度分率	Kg.solt / Kg.solu. ^(**)	4
\tilde{C}_{m2}	結晶内への母液の飽和濃度分率	"	4
C ₀	飽和濃度	Kg.solt / Kg.solu.	4
C _p	比熱	kcal/kg°C	6
C _∞	結晶粒子面から十分離れた場所の母液濃度	Kg.solt / Kg.solu.	7
D	カラドリヤ加熱管の内径, または	m	6
D	拡散係数	m ² /sec.	7
d	結晶粒径 (平均値)	m	4
d ₀	初期の結晶粒径 (平均値)	m	4

註) { (*) Kg-solute / Kg-solution の略記号
 (**) Kg-solute / Kg-solvent の略記号

記号	説明	単位	使用した章
F	混合凝縮器への吸込み速度 (流量), 且つ 干渉入力信号	m^3/hr	6 7
Fa	吸入空気速度 (流量)	Nm^3/hr	4
Fk	水次の定常状態におけるプロセス自由度の個数	—	3
Fp	プロセス変量の個数	—	3
f	自由度の個数, 且つ マスキット循環流の駆動力, 且つ 関数記号, たとえば $f(x, y; t)$.	— Kg —	3 6
G	真空槽への排気速度 (流量)	Kg/hr	4
Gp	伝達関数	—	7
g	重力の加速度	m/sec^2	6
hc	注入温水のエンタルピー	$Kcal/Kg$	4
hd	結晶粒子のエンタルピー	"	4
hm1	注入母液のエンタルピー	"	4
hm2	マスキット母液のエンタルピー	"	4
hm2'	マスキットの見かけエンタルピー	"	4
ho	加熱蒸気のエンタルピー	"	4
hs1	蒸気空間部の蒸気のエンタルピー	"	4
hs2	混合凝縮器中の蒸気のエンタルピー	"	4

記号	説明	単位	使用注意
J, J_i	一般化流束	(m^3/hr)	3
j_{dh}	結晶化熱発生速度	Kcal/hr	4
j_{dl}	結晶の溶解速度	Kg/hr	4
j_{mh}	蒸発熱速度	Kcal/hr	4
j_{mh}^0	定常蒸発熱速度	"	4
j_{dw}	結晶成長速度	Kg/hr	4
j_{dw}^0	起晶直後の結晶成長速度	"	4
j_{mw}	蒸発速度	"	4
K_1, K_2	(4-3.53)式で導入した係数	Kcal ⁻¹ , Kg ⁻¹	4
K_b	沸騰係数	—	4
K_j	(4-2.17)式参照 (= $k_j(z-1)$)	m/hr	4
K_p	ゲル定数, (4-2.4)式参照	—	6
K_{ps}	(4-3.44)式で導入した定数	m ² /Kg	4
K_{p1}	調節器のゲル定数, 図4-2.3参照	—	7
K_{p2}			
K_{p3}			
K_s	結晶成長速度係数	Kg/hr·m ²	4
k	蒸発速度係数	hr ⁻¹	4
k_1, k_2	Robinsonの粘度式の係数, (4-3.2)式参照	—	4
k_{cs}	$= \Delta F / \Delta W_c$	m ² /Kg	4
k_i	定常状態の次数	—	3
k_j	結晶成長の係数, (4-2.17)式参照	m/hr	4
k_g	加熱蒸気に関する値 ($= \Delta Q / \Delta W_0$)	Kcal/Kg	4
k_{c0}	$= \Delta C_{m2} / \Delta \theta_{m2}$	°C ⁻¹	4
k_x	Einstein粘度式の係数	—	4
k_{op}	$= \Delta \theta_{m2} / \Delta p_{si}$	m ² °C/Kg	4
$k_{s'}$	完全ガスの状態式のガス定数	m/°C	4

記号	説明	単位	使用した章
k_{sm}	$= \Delta T_{m2} / \Delta C_{m2}$	kg/m^3	4
$k_{p\theta}$	$= \Delta k_{r2} / \Delta \theta_{c2}, \Delta p_m / \Delta \theta_m, \Delta p_s / \Delta \theta_{m2}$	$kg/m^2 \cdot ^\circ C$	4
k_a	} (4-1.19) 式で導入した定数	—	4
k_b		hr/m^2	4
k_{ps}	(4-2.34) 式で導入した係数	m^2/kg	4
k_f	(6-2.3) 式 " "	—	6
k_r	(6-2.9) 式 " "	—	6
k_{α}	(6-2.8) 式 " "	—	6
L, L_{ij}	現象係数	$(m^5/kg \cdot hr)$	3
L_0	マスクの初期仕込み液位	m	4
l	マスクの液位	m	4
l_0	カラム内の加熱管の長さ	m	6
M	結晶成長の攪拌係数	—	4
N	マスクの循環率	$\% / hr (min)$	6
N_u	ヌセルト数	—	6
n	マスク中の結晶粒子数	—	4

記号	説明	単位	使用した章
P_n	フロントル数	—	6
p_a	蒸気空間部の空気分圧	kg/m^2	4
p_m	温度 t_m に対する液の飽和圧力	"	4
p_{m2}	缶内母液またはマスクの飽和圧力	"	4
p_0	加熱蒸気の圧力	"	4
p'_0	カラム内の圧力	"	6
p_s	缶内真空度 ^(*)	kg/m^2 または mmHg	4
p'_s	排気管内の圧力	kg/m^2	5
p_{s1}	蒸気空間部の蒸気分圧	"	4
p_{s2}	混合凝縮器内の真空度 ^(*)	kg/m^2 または mmHg	4
Q	加熱速度	kcal/hr	4
R	マスク循環の流動抵抗	(hr/m^2)	6
Re	レイルス数	—	6
R_k	k 次の定常状態における拘束条件の個数	—	3
r	反応の個数	—	3
r_0	加熱蒸気の潜熱	kcal/kg	4
r_m	液の蒸発潜熱	"	4
r_{m2}	缶内母液の蒸発潜熱	"	4
r'_m	マスクの蒸気蒸発潜熱	"	4
S	ラプラス演算子	(hr^{-1})	4
T	回分時間	hr	7
T_i	調節器の積分時間	hr	7

註) (*) 大気圧より低い圧力を、本論文では慣例にしたがって、これを原則的に“真空度”と表現した。

記号	説明	単位	使用法と符号
T_{wc}	(4-2.37)式で導入した係数	Kg	4
T_{wo}	(4-3.44)式 " "	Kg	4
T_{wm}	(4-3.44)式 " "	Kg	4
t	時間 (時刻)	hr	
U	総括伝熱係数	Kcal/m ² °C hr	4
U_0	(6-2.8)式で導入した総括伝熱係数	"	6
U_a	吸入空気速度 (流量)	m ³ /hr	4
V	マスクットの循環容積速度	m ³ /hr	6
V_c	注入した湿水量	m ³	5
V_m	缶内マスクットの容積	"	4
V_s	蒸気空間部の容積	"	4
U	マスクットの循環速度, 日毎	m/hr	6
	時刻における操作量値	—	7
V_d	マスクット中の結晶粒子の全容積	m ³	4
V_{m2}	マスクットと蒸気空間との境界面における比容積	m ³ /Kg	4
V_{s1}	蒸気空間部の蒸気の比容積	"	4
v_a	空気の比容積	m ³ /kg	4
W_a	^(*) 吸入空気速度 (流量)	Kg/hr	4
W_c'	湿水注入速度 (流量)	"	4
W_{c1}	混合凝縮器の冷却水入口流入速度 (流量)	"	4
W_{c2}	" " " " 出口流出速度 (流量)	"	4
W_0	加熱蒸気速度 (流量)	"	4
W_m	母液注入速度 (流量)	"	4

註) (*) 流量という量が時間微分値であることを明確にするため、
本論文では あえてこれを "速度" と表現した。

記号	説明	単位	使用し主要章
w_s	混合凝縮器への吸込流入速度(流量)	kg/hr	4
X, X_i	一般化力	(kg/m ³)	3
X, x	制御量	—	7
x	マシキのカタサ(または流動度), 5.11	—	4
	隣接結晶粒子の面間距離	m	7
\bar{x}, \bar{x}	カタサの目標値	—	7
x_0	母液のカタサ(相当量)	—	4
x'_0	(7-12)式で定義した母液のカタサ(相当量)	—	7
y	操作量	—	7
z	釜内母液の過飽和度	—	4
α	熱伝達係数	Kcal/hr·°C	4
α_s	表面積係数	—	4
α_v	体積係数	—	4
β	沸騰係数(K_b)中の定数, 5.11は	°C ⁻¹	4
	(6-2-3)式で導入した定数, 5.11は	—	6
	(7-2-1)式 " "	—	7

記号	説明	単位	使用上の注意
ε	外乱信号	—	8
γ_c	水の比重量	kg/m^3	4
γ_d	結晶の比重量	"	4
γ_{m2}	釜内母液の比重量	"	4
γ'_{m2}	マスクットの見かけ比重量	"	4
γ_{s1}	蒸気空間の蒸気の比重量	"	4
δ	拡散境界膜厚 δ	m	7
δ_c	結晶発生の際の境界膜厚 δ_c	m	7
ε	制御偏差信号	—	7
θ_c	温水の注入温度	$^{\circ}\text{C}$	4
θ_{c1}	混合凝縮器の冷却水入口温度	"	4
θ_{c2}	" " " 出口温度	"	4
θ_o	加熱蒸気温度または加熱面温度	"	4
θ'_o	ランド灯のドレン温度	"	4
θ_m	液温度	"	4
θ_{m1}	液の沸騰温度	"	4
θ_{m1}	母液注入温度	"	4
θ_{m2}	釜内母液またはマスクットの温度	"	4
θ_{m2}	釜内母液またはマスクットの沸騰温度	"	4
θ_{s1}	蒸気空間の蒸気温度	"	4
θ_{s1}	排気管内の温度	"	5
θ_{s2}	混合凝縮器内の温度	"	4

記号	説明	単位	使用した章
λ	隣接結晶粒子面間の半距離	m	7
λ_0	" " " の臨界半距離	m	7
μ	粘度	poise	4
μ_0	粘性係数	—	4
ρ	密度	$\text{kg hr}^2/\text{m}^4$	6
ϕ	相の個数	—	3
ϕ_v	マスクの結晶総容積分率	—	4
ϕ_w	マスクの結晶総重量分率	—	4
ψ	界面の個数	—	3
τ	時定数	hr	4
	時刻	"	7
τ_1	= C/α 表(4-1.2)に示した時定数	"	4
τ_2	(4-1.29)式で導入した時定数	"	4
τ_D	調符器の微分時間	"	7
τ_I	調符器の積分時間	"	7
τ_0	(4-1.19)式で導入した時定数	"	4

添記号表

記号	説明	単位	使用法
* **	} 上つき添記号, 母記号の時間指定値 たとえば, 時刻 t について t^* , t^{**}		
’	上つき添記号, 母記号の見かけ値 たとえば, 比重 δ について δ'		
o	上つきまたは下つき添記号, 母記号の初期値をあらわす たとえば, カタカ x について x_0		
—	上つき括線記号, 母記号の定常値をあらわす たとえば, 外気吸入速度 U_a について $\overline{U_a}$		

あとがき

本研究は森政弘教授の総合的な御指導と御鞭達の下に行なわれたものである。また、本論文の草稿が出来上りつつある段階において、寺野寿郎教授、稲積彦二教授、早川豊彦助教授、市川惇信助教授、森永智昭助教授の懇切なる御指導をお受けした。さらに妹尾学助教授には、とくに第3章の内容に関する御助言を頂いた。実験の全般に関しては、もと東京大学大学院学生の前GETSCO 郭仁波博士、現三菱化成内田恒夫氏の御援助を受け、実フロント実験については、名古屋精糖(株)および(株)電元オートメーションの各技術部の方々の御協力を得た。なお、データの整理および原稿の作成については東京大学生産技研三谷通生氏の献身的な御助力も頂いた。

以上の方々に対し、心から厚く御礼申し上げると共に、今後本研究を発展させてゆく段階においても、引き続き御指導を賜りたく念じている次第であります。

梅谷陽二