壺ガラス用ガラス熔解タンクの混合特性について

岸 上 弘

(東洋ガラス技術部)

Mixing Character of Glass-melting Tank for Container Manufacturing

By

Hiromu KISHIGAMI

(Toyo Glass Co. Ltd, Kawasaki, Kanagawa)

Mixing function of glass-melting tank is of most important for obtaining high homogeneity of glass. It was assumed that the mixing process developing in glass tank is a kind of diffusion process which is caused by mixing action mainly resulting from thermal and mechanical currents. A fundamental differential equation involving the "mixing diffusion coefficients", k_x , was proposed for discussing the mixing character of a given tank.

The numerical value of k_x could be computed by applying a few practical values such as the dimension of tank, the axial mean velocity of glass flow and the time spent till the tracer concentration gets a maximum, $T_{\max}$, to an equation obtained one of the solutions of the differential equation mentioned above.

Variation of any physical value of glass pulled out during operation is characteristically affected by the values of k_x and pull rate imposed on the tank. Hence, the feature of the physical value-time curve is characterized by k_x and $T_{\max}$ as the factors dominantly controlling the mixing effect of glass tank, which gives some fruitful suggestions concerning the mixing character of the tank.

[Received May 29, 1970]

1. 緒 言

タンク窯についての石、泡、コード、生地の不均一性など、ガラス容器の欠点に関する原因は数多くある。このうち、熔解窯の容量に対する取出量の比率、熔解窯内のガラスの混合の度合、または Dog house に投入される原料成分の変動もまた上記の欠点を引起す原因である。これらの因果関係を究明するために、著者はタンク窯の混合特性について研究した。

これまでにタンク窯内の熔融ガラスの挙動について、Lokay¹⁾ は単にトレーサー実験を行ない、Cooper²⁾ は窯内を数個に区分し、それぞれの cell で混合し、cell から cell へと Piston flow が起ると考えた。これは丁度窯内でパブリングを行なった場合とかフィーダーでスターを使用した場合などには適用されるが、一般の窯については完全には当てはまらない。また Platt³⁾ は投入されたパッチ成分に対する応答は測定の時点で一階の微分方程式で表わされると考えた。しかし、input に対する mode time を変えないで、任意の測定場所における応答は得られない。これに対して Sawai^{4)~7)} などは混合流れを考え、モデル実験で無理なく窯内の流れを説明した。

著者も後者と同じ考えに立ち広い意味で“混合を伴う流れ”であると考え、実際のタンク窯についてトレーサ

ー実験あるいは色替え実験を試み上記の理論を多角的に検討した。

2. 理 論

投入口から送り込まれたパッチがガラス化したあと、タンク中の熔融ガラスと混り合っていく過程は、濃度勾配に基づく真の意味での拡散のほか、熱的および機械的な熔融ガラスの流れに伴う混合作用を含んでおり、かつ後者がむしろその過程の決定的な要素となっているが、それは、広い意味で拡散的であるといえる。そこで、この過程を混合流れ (mixing-flow) と呼ぶこととする。

真の意味での拡散は取出の時点においても半径数ミリメートルを超えることのないごく限られた範囲内の現象である。したがって、ここで混合流れを取扱う以上、真の拡散は考えないとする。

いま、三次空間 x, y, z において、熔解ガラスが混合しながら流れ、それに伴って物理量 S (S は、比重、コードまたはガラス原料中の任意の成分など、いかなる物理量であってもよい) が時間 t とともに変化する場合を考える。

x, y, z 方向の速度成分を u_x, u_y, u_z とし、混合拡散係数 (mixing diffusion coefficient) を k (測定対象 S

と無関係に濃度拡散のディメンジョンを有する) とすれば次式が成立する⁷⁾.

$$k_x(T) \frac{\partial^2 S}{\partial x^2} + k_y(T) \frac{\partial^2 S}{\partial y^2} + k_z(T) \frac{\partial^2 S}{\partial z^2} - u_x \frac{\partial S}{\partial x} - u_y \frac{\partial S}{\partial y} - u_z \frac{\partial S}{\partial z} = \frac{\partial S}{\partial t} \quad \dots\dots\dots (1)$$

ただし T は温度で、それぞれ x, y, z の関数である。

2.1 デルタ関数の応答

今回の実験では input と output のみを測定対象としているのでかなり粗い近似法かも知れないが、 y, z 方向の流れや流系内の温度分布を無視すると (1) 式^{4)~7)} は

$$k_x \frac{\partial^2 S}{\partial x^2} - u_x \frac{\partial S}{\partial x} = \frac{\partial S}{\partial t} \quad \dots\dots\dots (2)$$

t を変数とする単位パルスを $\delta(t)$ とした場合
条件

$$t < -\frac{\delta t}{2}, x \geq 0 \text{ で } S = S_0 \\ -\frac{\delta t}{2} \leq t \leq \frac{\delta t}{2} \begin{cases} x=0 \text{ で } S = \bar{S} \\ x > 0 \text{ で } S = S_0 \end{cases}$$

ただし、集中 input $\bar{S}$ は $x=0$ (パッチ投入口) において、 $t=0$ (投入時) を中心に $\pm \delta t/2$ の時間帯で、一定な分布関数 $S_a(t)$ (単位時間当たり投入する input の量) を有する。そして $\delta t \rightarrow 0$ とした極限で次式を満足するものと考えられる。

$$\bar{S} = \lim_{\delta t \rightarrow 0} \int_{-(\delta t/2)}^{+(\delta t/2)} S_a(t) dt = \lim_{\delta t \rightarrow 0} S_a(0) \delta t \quad \dots\dots\dots (3)$$

したがって分布関数 $S_a(t)$ は次式で与えられる。

$$S_a(t) = \bar{S} \delta(t) \quad \dots\dots\dots (4)$$

上記の条件を満足する (2) 式の解は

$$S - S_0 = \frac{x \exp\left\{-\frac{(x-u_x t)^2}{4 k_x t}\right\}}{2 \sqrt{\pi k_x t^3}} \bar{S} \quad \dots\dots\dots (5)$$

また、原料投入位置から取出までの距離 $x=L$ において、 S が peak 値になるまでの時間 $T_{\max}$ を求める。
(5) 式を微分して $\partial S / \partial t = 0$ より

$$T_{\max} = \frac{\sqrt{9 k_x^2 + u_x^2 L^2} - 3 k_x}{u_x^2} \quad \dots\dots\dots (6)$$

S の最大値 $S_{\max}$ は

$$S_{\max} = S_0 + \frac{L \exp\left\{-\frac{(L-u_x T_{\max})^2}{4 k_x T_{\max}}\right\}}{2 \sqrt{\pi k_x T_{\max}^3}} \bar{S} \quad \dots\dots\dots (7)$$

となる。

$x=L, u_x, T_{\max}$ が与えられれば混合拡散係数 k_x は

$$k_x = \frac{L^2 - u_x^2 T_{\max}^2}{6 T_{\max}} \quad \dots\dots\dots (8)$$

から求められる。

2.2 単位関数および任意関数の応答

タンク窯の色替えを行なうとき、物理量 S (例えば比重) の変化を求めるには単位関数 $E(t)$ のインディシャル応答がわかる必要がある。

条件 $t < 0, x \geq 0$ のとき、 $S = S_0$

$t \geq 0, x=0$ で $S = S_i E(t)$

のもとで (2) 式を解くと

$$S = \frac{S_i}{2} \left\{ \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{k_x t}} - \frac{u_x}{2} \sqrt{\frac{t}{k_x}}\right) + \exp\left(\frac{u_x}{k_x} x\right) \times \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{k_x t}} + \frac{u_x}{2} \sqrt{\frac{t}{k_x}}\right) \right\} + S_0 \quad \dots\dots\dots (9)$$

次に、input の物理量 S が時間とともに変動する任意の関数が与えられた場合の output の物理量の変化を求める。

条件 $t < 0, x > 0$ のとき $S = S_0$ (一定)

$t \geq 0, x=0$ で $S = f(t)$

のもとで、(2) 式を解く。ただし、 $x=0$ における条件 $S = f(t)$ で与えられるのは原料が投入される窯の投入口であって、窯内部の $x=0$ の位置とは正確には一致しない。しかし投入原料が溶解し、取出に到る窯の長さにして上記の条件の差は無視して考えるものとする。

$$S = \frac{1}{2} \int_0^t \frac{df(\tau)}{d\tau} \exp\left(\frac{u_x}{2 k_x} x\right) \left\{ \exp\left(-\frac{u_x}{2 k_x} x\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{k_x(t-\tau)}} - \frac{u_x}{2} \sqrt{\frac{t-\tau}{k_x}}\right) + \exp\left(\frac{u_x}{2 k_x} x\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{k_x(t-\tau)}} + \frac{u_x}{2} \sqrt{\frac{t-\tau}{k_x}}\right) \right\} d\tau + S_0 \quad \dots\dots\dots (10)$$

を得る。ただし、積分範囲は t について $0 \sim \infty$ で、 τ は $f(\tau)$ についての時間で、 $0 \sim t$ の範囲である。

3. 実験および計算結果

3.1 トレーサー実験

Li_2O をトレーサーとする実験をタンク窯 (A) — タンクの長さ $L=12.6$ m, 容量 $C=148.4$ t, 取出量 $H=5.14$ t/hr — に対して実施した。ある 1 調査単位のパッチに 54 kg の炭酸リチウム (Li_2O として 21.9 kg) を添加し、このパッチ投入後の時間の経過に対して、取り出されるガラス中の Li_2O 濃度の測定を行なった。

トレーサー実験における測定結果を図-1 の○印で示

Fig. 1. Concentration variation of Li_2O in glass pulled out when Li_2O was added as a flow tracer.

す。

上記のパターンについて、タンク窯内の平均流速 u_x および混合拡散係数 k_x の値を求めるため (5) 式と Li_2O の総量を用い、 u_x と k_x を変化させ計算値と実測値との差 σ をとり、 σ が最小値になるような u_x と k_x を採用して実験値に最も近い曲線を選んだ。図-1 の実線で示す。

その結果 $k_x = 1.34 \text{ m}^2/\text{hr}$, $u_x = 0.410 \text{ m/hr}$ の場合で $\sigma = 23.88 \text{ ppm}$ であった。

u_x を求める別法として、 L (窯の長さ m), H (取出量 t/hr), C (窯の容量 t) とおくと、タンク窯内の生地の平均速度 u_a (m/hr) は

$$u_a = \frac{LH}{C} \quad (11)$$

から求まる。(11) 式より u_a を求めると 0.435 m/hr が得られ、 $u_x = 0.410 \text{ m/hr}$ にかかなり近似した値を示す。

次に、(6) 式と (7) 式から $T_{\max}$ とそのときの $S_{\max}$ を求めると $T_{\max} = 15 \text{ hr}$, $S_{\max} = 1.72 \times 10^2 \text{ ppm}$ を得る。上記の結果 $L = 12.6 \text{ m}$, $u_x = 0.410 \text{ m/hr}$, $k_x = 1.34 \text{ m}^2/\text{hr}$ を用いて (9) 式から単位関数に対する応答を求めた。図-5 にその結果を示す。pull 5.14 t/hr の場合がそれである。この曲線は窯 (A) について色替時の色調の変化または比重の変化を表わすパターンである。

3.2 原料組成の変動と比重変動

原料珪砂に含まれる水分の変動は、引きあげられるガラス生地の比重に対して、どのような影響を与えるであろうか。珪砂中の含有水分が 1% 変化すると、その組成変動に伴う比重変動は $1.40 \times 10^{-3} \text{ g/cm}^3$ になる。

操業中の十分に長い期間のガラスの平均比重 S_w を基準としたとき、窯に投入される原料がガラス化した場合に生ずべき比重変動は次式

$$P = 1.40 \times 10^{-3} \times W \quad (12)$$

で表わされる。ただし、 W は珪砂中に含まれる平均水分から求めた変動の % である。

水分含有率は図-2 に示すように、バッチ毎に不連続な値をもつので (12) 式によって換算し得られるガラス比重も不連続になる。したがって、連続な関数とは異なり、求める微分値の精度を評価することは困難である。

Fig. 2. Water content variation of silica sand used and density variation of glass pulled out.

よって、ここでは (10) 式の右辺に関して

$$S = \frac{1}{2} \sum_{m=0}^{\infty} \Delta f \exp\left(\frac{u_x}{2k_x} x\right) \left\{ \exp\left(-\frac{u_x}{2k_x} x\right) \times \text{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{k_x \Delta t(m-p)}} - \frac{u_x}{2} \sqrt{\frac{\Delta t(m-p)}{k_x}}\right) + \exp\left(\frac{u_x}{2k_x} x\right) \times \text{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{k_x \Delta t(m-p)}} + \frac{u_x}{2} \sqrt{\frac{\Delta t(m-p)}{k_x}}\right) \right\} + S_0 \quad (13)$$

のように単に、内挿式 Newton 微分法の第 1 項を採用するにとどめた。ただし、 $t = m \Delta t$, $\tau = p \Delta t$, $\Delta f = f_{p+1} - f_p$ である。

上式から、 $t < 0$ における窯内のガラスの比重を $S = S_0$ とおき、3.1 節で得た窯の混合特性値 $u_x = 0.41 \text{ m/hr}$, $k_x = 1.34 \text{ m}^2/\text{hr}$ から $x = L = 12.6 \text{ m}$ における S の値 (ガラスの比重) を数値計算する。図-2 にその結果を示す。実線、点線はそれぞれ計算値、実測値である。両者はかなりよく一致している。

3.3 色替え実験

バブリングを施している窯 (B) について色替え実験を行なった。窯のディメンションは $L = 8.3 \text{ m}$, $H = 0.333 \text{ t/hr}$, 容量は $C = 11.1 \text{ t}$ である。

色替え時における output の比重変化を求めた結果を図-3 の○印で示す。

Fig. 3. Density variation proceeding with batch composition exchange.

単位関数 $E(t)$ に対する応答として (9) 式を用い、トレーサー実験の場合と同様、実測値に最も近い u_x , k_x を求めた。その結果、 $u_x = 0.249 \text{ m/hr}$, $k_x = 0.20 \text{ m}^2/\text{hr}$ の場合が実測値に最も一致した。この場合の計算値を図-3 の実線で示す。(11) 式から平均速度を求めると $u_a = 0.249 \text{ m/hr}$ で上記の u_x と全く一致する。

以上の結果から、タンク窯内のガラス生地の平均流速は単に (11) 式から求められる値で十分であることがわかった。

窯 (A) の混合拡散係数 k_x と比較して窯 (B) のそれは約 1/7 である。また、出発時間 (arrival time) T_a も窯 (A) は約 5 時間、窯 (B) のそれは 9 時間と 2 倍近い時間を要する。 $T_{\max}$ についても同様に窯 (A)

では 15 時間、窯 (B) では 25 時間であった。

4. 検討および考察

4.1 取出量が増減した場合

取出量の増減による k_x の変化はないものと考え、デルタ関数 $\delta(t)$ および単位関数 $E(t)$ に対する応答を調べた。

窯 (A) について、取出量を増減させた場合の $\delta(t)$ の応答を図-4に示す。取出量の減少につれて $T_{\max}$ が長くなり濃度の極大値 $S_{\max}$ が比例的に減少する。また $E(t)$ に対してはどう応答するかを図-5に示す。取出量の増加にともなう立上りが鋭くなり、より早く定常値に近づく。

引上げられるガラスが色替えしようとするガラスによって 90% まで置き換えられる時間をみると、窯 (A) の 5.14 t/hr の取出量では約 54 時間必要とするが、取出量を 20% 増加した 6.168 t/hr にすることにより、約 10 時間短縮させることができるし、逆に 20% 減少させ 4.112 t/hr にすると 16 時間余おくれることになる。

次に珪砂中の水分が一定値より 2% 交互に増減させた

Fig. 4. Time dependence of concentration variation of Li_2O in glass pulled out in various cases different in pull-rate.

Fig. 5. Time dependence of glass substitution rate in various cases different in pull-rate.

場合にガラス生地の比重がどう変化するかを調べた。

図-6 は最初の 10 hr は水分が 2% 増加 (ガラス比重で $+28 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ 増加) し、次の 10 時間は一定含水量より 2% 減少 ($-28 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ 比重減) した珪砂を投入した場合の output のガラス生地の比重変動である。

一般に、トレーサー実験では input の影響が output で検出されたとき、それまでの時間を出発時間 (arrival time) と呼んでいる。ここでは曲線の最初の部分で、その微係数が急激に変化する時点を称して、その間の時間を出発時間 T_a と呼ぶ。 T_a はこの場合取出量の減少につれてわずかに長くなる傾向にある。

ほぼ 20 時間後に極大値が存在する。しかも、極大値は取出量の増加に比例して大きくなっている。極小値に達する時間は取出量の減少にともなう 34 時間から 42 時間へと時間遅れが生じてくる。極小値の絶対値は図-6 に示すように取出量の増加によって加速度的に大きくなっている。

Fig. 6. Density variation of the pulled glass whose batch was fed with varying water content which was held at 2% higher than the standard for the first 10 hr and was lowered 2% down than the standard for the next 10 hr and then returned to the standard content.

4.2 混合拡散係数が異なった場合

混合拡散係数 k_x によって窯の混合特性曲線がどう変化するかを図-7に示す。

$k_x = 1.34 \text{ m}^2/\text{hr}$ は前述のトレーサー実験で得られた窯 (A) についての結果であるが、 k_x が大きくなると完全混合に近づくので、曲線は鋭く立上り、極大値に達する時間 $T_{\max}$ が短く、しかも出発時間 T_a も短くなる。

Fig. 7. Tracer concentration variation characteristics in various cases different in the value of mixing-diffusion coefficient k_x .

これに反し、 k_x が小さくなると T_a , $T_{\max}$ ともに延び、曲線は一旦平坦になるが、さらに k_x が小さくなると再び鋭く立上ってくる。

極限として、混合が全く行なわれなくなると投入した原料はある時間後に一時に全部出払うことになる。このとき $T_a = T_{\max}$ となり、窯 (A) では約 32 時間となる。

パッチの組成変動または色替えにおけるタンク窯の応答特性としては、 k_x が小さく、 T_a が長いことが要求される。なぜならば、投入された原料がガラス化および均質化するに十分な時間が必要であることと、均質化が十分に行なわれた生地に未溶解のガラスが混入しないことも必要だからである。

窯 (A), (B) について混合特性値を比較すると、窯 (A) の $k_x = 1.34 \text{ m}^2/\text{hr}$, $T_{\max} = 15$ 時間で窯 (B) では $k_x = 0.20 \text{ m}^2/\text{hr}$, $T_{\max} = 25$ 時間である。

事実、製品を較べても泡、コードなどの点で、その良

否はすぐに判断できるほどの差異が認められた。

このようなガラスの均質化に関して窯 (B) が非常にすぐれていることがわかる。

5. 総 括

(1) ガラスタンク中の熔融ガラスの混合を、主として熱的および機械的な流れによる混合を伴った一種の拡散過程とみなして、その混合拡散係数 k_x をパラメーターとしてタンク内の混合特性を検討する方法を提案した。

(2) k_x の値は、タンクの寸法、生地ガラスの軸方向平均流速およびトレーサー濃度が極大に達するまでの時間の実測値 $T_{\max}$ を (8) 式に適用することによって算出される。

(3) タンク操作中に取出されるガラスの任意の物理量の時間的変化は k_x および取出速度で決まり、かつそれによって得られた混合特性曲線の様相は k_x および $T_{\max}$ の値によって特徴づけられ、この両者がタンクの混合効果を支配するきわめて重要な要素であることが明らかとなった。

文 献

- 1) J.D. Lokay, *Glass Ind.* **46** [5] 258-61 (1965).
- 2) A.R. Cooper, *J. Am. Ceram. Soc.* **42** [2] 93-101 (1959).
- 3) D.M.H. Platt, *Glass Ind.* **49** [8] 428-32 (1968).
- 4) I. Sawai, *Bull. Inst. Chem. Research, Kyoto Univ.* **30**, 1-14 (1952).
- 5) I. Sawai, M. Tashiro, K. Takahashi and K. Tabuchi, *Proc. International Commission of Glass 1*, 96-120 (1954).
- 6) M. Kunugi, T. Takahashi and I. Sawai, *Advan. Glass Tech.* **VI**, 165-74 (1962).
- 7) 矢木, 宮内, 化学工学, **17**, 382 (1953).

[5/29/1970 受付]