寄 書

抽出晶析における結晶成長に及ぼす 分離剤の影響

村田 芳治・廻 信康
染 谷 幸 夫*

東京農工大学工学部 化学工学科

共融混合物を作る融液を分別晶析で分離していくと母液は共融組成に到達する。この共融混合物を効果的に分離する方法の一つに抽出晶析がある。

抽出晶析では添加する分離剤の選定とその分離剤が結晶成長に及ぼす影響が問題となる。分離剤の選定に関しては Chivate¹⁻⁴⁾ らの一連の研究があるが、液-液抽出における最適抽剤の選定と同様に実験的探究によらなければならない。

一方、結晶成長に及ぼす分離剤の影響についてはまったく研究されていない。本研究は (*m*CNB**-**o*CNB) および (*p*NT***-**m*NT) の2成分融液に分離剤としてそれぞれ DCB****, TBA***** を用い、先に検討した結果⁵⁾ に基づいて、結晶成長機構と成長速度に及ぼす分離剤の影響を検討した。

実験方法および実験結果の整理法

用いた実験装置と実験方法は前報とまったく同様に行なった。

実験は2成分系の融液に分離剤を添加した3成分系の融点曲線図を Fig. 1 のように求め、図から着目結晶が析出する範囲で行った。

融液からの結晶成長が結晶化反応過程律速の場合は重量成長速度式は次式⁵⁾ で表される。

$$\frac{dW}{A d\theta} = k \Delta T^n \quad (1)$$

結晶が相似成長する場合は結晶の重量と面積との間には $A = \alpha W^{2/3}$ の関係が成立するので、Eq. (1) を ΔT 一定の条件で積分すると次式のようになる。

$$W^{1/3} - W_0^{1/3} = \frac{\alpha}{3} k \Delta T^n \theta \quad (2)$$

ただし W_0 は種晶の、また W は θ 時間後の結晶の重量を表す。Eqs. (1) と (2) を用いて実験値の整理⁵⁾ を行った。

実験結果および考察

拡散過程の影響 本実験は 500 rpm の搅拌速度で行

* 入江鉄工所 (株)
** CNB: Chloronitrobenzene
*** NT: Nitrotoluene
**** DCB: Dichlorobenzene
***** TBA: Tertiary butylalcohol

Fig. 1 Isotherms of ternary system for *m*CNB, *o*CNB and *p*DCB

Fig. 2 The effect of diffusion on crystal growth

ったが、実験に先だって、拡散過程の影響を検討した。すなわち、まず 500 rpm の搅拌速度で結晶重量 W の時間的变化を測定し、次に搅拌速度を 800 rpm にあげ、その他の条件を一定にして W と θ の関係を求め、得られた結果を Eq. (2) によって $W^{1/3}$ と θ との関係でプロットする。もし 500 rpm の搅拌速度で拡散過程の影響があるならば、Fig. 2 のように両者の結果は同一直線上には乗らず、800 rpm の場合の直線の傾斜は、500 rpm のそれより大きくなるはずである。したがって、Fig. 2 のように両者の結果を一つの直線で表される場合は結晶化反応過程が律速であることを示す。このような検討を各実験条件で行ったが、Fig. 2 のような関係が得られ、全実験範囲で結晶化反応過程が律速であることが確認された。

***m*CNB 系について** *m*CNB が晶出する範囲内で DCB を添加し、融液濃度を種々変えて実験し、重量成長速度と過冷却度 ΔT との関係を求めた。得られた結果を Fig. 3 に示す。実験した濃度範囲は図中の表と 3 角座標とによって示した。図から Eq. (1) が成立することが認められ、直線の傾斜は 2.0 となり、重量成長速度は過冷却度 ΔT の 2 乗に比例する。この結果は 2 成分系で得られた結果⁵⁾ とまったく同一である。

***p*NT 系について** *p*NT 系では分離剤として TBA を添加し、*m*CNB 系と同様に重量成長速度と過冷却との関係を検討した。得られた結果は Fig. 4 に示すようである。図から *p*NT の場合も 2 成分系とまったく同様に重量成長速度は過冷却度の 1 乗に比例する。

重量成長速度式について Figs. 3 と 4 とから k の値

Fig. 3 Relationship between crystal growth rate and supercooling for mCNB system

Fig. 4 Relationship between crystal growth rate and supercooling for pNT system

を求め、これと融液の飽和温度 T の逆数との関係を示すと Fig. 5 のようである。図中の直線は分離剤を添加しない2成分系で得られた結果⁵⁾を示した。図に見るように3成分系の結果は図中の直線によく表すことができる。よって Figs. 3, 4 および 5 から分離剤を添加した場合も2成分系で得られた次の重量成長速度式が適用できることが認められる。

$$\begin{aligned} \text{mCNB} \quad \frac{dW}{A d\theta} &= 2.00 \times 10^{11} \exp\left(\frac{-21.3 \times 10^3}{RT}\right) \Delta T^2 \\ \text{pNT} \quad \frac{dW}{A d\theta} &= 5.64 \times 10^9 \exp\left(\frac{-19.3 \times 10^3}{RT}\right) \Delta T \end{aligned}$$

分離剤を添加した場合のステップを観察したところ、2成分系の場合とまったく同様の各系の特徴的なステップが認められた。また Figs. 3, 4 および 5 の結果からこの場合の結晶成長機構は2成分系からのそれと同一であると考えられる。しかるに、mCNB および pNT の結晶は結晶成長単位の表面拡散機構によって成長することが知られて⁵⁾いるので、活性化エネルギーが変化しないことは、結晶表面に結晶成長成分以外の成分が吸着されていないことを意味している。したがって多成分系融液からの結晶成長速度は結晶化反応過程が律速の条件では、2成分系の成長速度式からその融液の飽和温度を求めることにより推定することができる。

Nomenclature

A	= surface area of crystal	[cm ²]
k	= constant in Eq. (1)	[—]
n	= order of T	[—]
T	= saturation temperature	[°K]
ΔT	= degree of supercooling	[°C]
R	= gas law constant	[cal/mol · °K]
W	= weight of crystal	[g]

Fig. 5 Relationship between k and $1/T$ for (mCNB)-(oCNB)-(pDCB) and (pNT)-(mNT)-(TBA) ternary system

α = constant in Eq. (2) [—]
 θ = time [sec]

Literature cited

- Chivate, M.R. and N.C. Parikh: *Indian Chem. Eng. (Trans.)*, **10**, 121 (1968)
- Chivate, M.R. and N.C. Parikh: *ibid.*, **8**, 111 (1966)
- Dikshit, R.C. and M.R. Chivate: *Chem. Eng. Sci.*, **25**, 311 (1970)
- Dikshit, R.C. and M.R. Chivate: *ibid.*, **26**, 719 (1971)
- Murata, Y., F. Sato and S. Tachikawa: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **1**, 14 (1975)

(1973年9月19日受理; 化学工学協会新潟大会(新潟, 1973年7月)にて発表)

The Effect of Separation Agent of Crystal Growth for Extractive Crystallization

Yoshiharu Murata, Nobuyasu Meguri
and Yukio Someya*

Dept. of Chem. Eng., Tokyo Univ. of
Agriculture and Tech., Tokyo

The influence of separation agents for extractive crystallization on crystal growth was studied. Adding dichlorobenzene and tert-butyl alcohol to the binary

melts of (*m* chloronitrobenzene-*o* chloronitrobenzene) and (*p* nitrotoluene-*m* nitrotoluene) as the separation agent, the crystal growth from these ternary mixed melts was observed at various compositions and compared with the results from binary melts.

Following conclusions were obtained:

- (1) The mechanisms and rates of crystal growth are not affected by the separation agent
- (2) The rate of growth can be estimated by the equations obtained from binary melt with saturation temperature of ternary mixed melts.

* Irie Eng. and Meg. Co., Ltd.

オリフィスからの粉粒体の流出速度式

油谷 暢悦・藤田 重文

東京農工大学工学部 化学工学科

容器内の粉粒体が、重力下でオリフィスから大気中に流出する速度に関する研究は、すでに数多く報告されているが、既往の流出速度式に用いられている変数は、各速度式によって異なり、一般性のある速度式は、まだないようである。すなわち、適用される粒子物性の範囲が限られ、特に粒子密度の検討は不十分である。

そこで、著者らは、既往の諸研究の結果を検討しつつ、まず、非付着性粉体 ($D_p > 0.02 \text{ cm}^3$) の流出速度に関与すると思われる因子を選んで、次元解析を行い、諸因子間との相関関係を求め、流出速度に関する著者らの実験値および既往の文献値を用いて、相関関係の適用性を検討した。その結果、オリフィスからの流出速度に関して、より整理された速度式が求められ、また、既往の諸速度式の適用性についても検討がなされた。

流出速度に関与する諸因子

諸因子の採択と整理 従来の諸研究は、(1) 巨視的に実験式を求めたもの^{1-3,5,11,12)}、(2) 流体力学的手法による解析^{9,10,14)}、(3) 流出口付近の粉体層にアーチの生成を仮定した理論解析⁶⁾、などに大別できるようであるが、本報告では、これらの研究結果を総括的に検討し、一般的整理を行った。

既往の諸速度式の多くは、質量流量で表した流出速度 F が流出口径 D_0 、平均粒径 D_p 、重力加速度 g 、および粒子群のかさ密度 ρ_a の関数になるとしている。これらの諸量のうち、 D_0 、 D_p 、 g については異論はないが、 ρ_a については若干の疑問がある。たとえば、非付着性粉体

の場合には、粉体層高が D_0 の 0.3~0.5 倍以上では層高は F に影響しないという諸家の結果^{4,6,7)}、あるいは装置内における粉体層の充填時の空隙率 ϵ_c は、 F に影響しないという結果^{1,3)}、などを考えると、 ρ_a よりも粒子の真密度 ρ_p の影響が大きいものと思われる。本報告においては後述するように、 $\Delta\rho/\rho_f$ を用いて整理した。

次に、従来の諸式では、摩擦係数 μ (安息角の正接) を考慮したもの^{13,16)}、あるいは Carman の形状係数 Φ_c を取り入れたもの²⁾、などもある。しかし、非付着性粉体の場合には、一般に μ は D_p の影響を受けるので、ここでは、 μ を独立変数とは考えないで、粒子形状効果をも考慮し、後述するように、球形粒子群と非球形粒子群の場合とに分けて考えた。以上の考察より、流出速度に影響する因子間の相関関係は、次元解析により、最終的に次式のようになる。

$$U_p/\sqrt{D_p g} = f_1(D_p/D_0, \Delta\rho/\rho_f, \Phi_c) \quad (1)$$

ただし、ここで U_p は次式で定義される粒子の流出口における仮想平均速度である。

$$U_p = F/(\pi/4) \cdot D_0^2 \rho_p \quad (2)$$

本報告では筒径の影響を受けない条件を選ぶ。また既往の諸式に用いられた試料の物性値およびオリフィス径を **Table 1** にまとめた。

整理式および考察

著者らおよび既往の諸研究者のデータ^{3,4,15)}からの再計算値を用いて、球形粒子群について、 $U_p/\sqrt{D_p g}$ と D_p/D_0 との関係をプロットする。ここで、Eq. (1) に基づき、パラメータを $\Delta\rho/\rho_f$ と考え、 D_p/D_0 の一定値について、常法に従ってその影響を調べたところ、 $U_p/\sqrt{D_p g}$ が $(\Delta\rho/\rho_f)^{1/8}$ に比例することがわかった。非球形粒子群についても同様の傾向が見られたので、 $(U_p/\sqrt{D_p g})/(\Delta\rho/\rho_f)^{1/8}$ と D_p/D_0 との関係をプロット

Table 1 Physical properties of materials and experimental condition

a) Spherical particles

Investigator	Materials	D_p [cm]	ρ_p [g/cm ³]	D_0 [cm]
Igarashi, H.	Glass beads	0.04	2.54	0.28~1.0
		0.03	2.53	0.28~1.0
	Cracking catalyst spheres	0.287	1.28	2.03~3.50
		0.0787	2.77	0.60~2.67
Franklin, F. C. <i>et al.</i>	Ion exchange resins	0.0787	2.77	0.60~2.03
		0.108	10.82	0.60~2.03
	Lead shot	0.127	10.82	0.602~2.03
		0.0287	2.90	0.635
Zenz, F. A. <i>et al.</i>	Lead shot	0.127	10.83	0.635
		0.0704	1.40	0.70~2.0
Author	Ion exchange resins	0.0498	1.40	0.70~2.0
		0.183	2.50	0.90~2.0
		0.130	2.50	0.70~2.0
		0.0647	2.50	0.70~2.0
	Glass bead	0.0459	2.50	0.70~2.0
		0.0418	2.50	0.45~1.9
		0.0296	2.50	0.45~1.9
		0.0272	2.50	0.70~2.0
	Lead shot	0.20	10.82	0.90~2.0

b) Non-spherical particles

Investigator	Materials	D_p [cm]	ρ_p [g/cm ³]	D_0 [cm]
Igarashi, H.	Silica sands	0.030	2.65	0.28~1.0
	Crushed olivine rock	0.0787	3.31	0.60~2.03
Franklin, F. C.	Coal	0.0787	1.38	0.60~2.03
	Sands	0.0661	2.65	5.07~2.53
Fowler, R. T.	Sands	0.0372	2.65	5.07
		0.280	1.43	2.53
Uematsu, T.	Sands	0.10	2.72*	0.52~1.58
		0.05	2.72*	0.52~1.58
Author	Toyoura sands	0.0252	2.65	0.70~2.0
	Soma sands	0.0772	2.65	0.90~1.9
	Sea sands	0.100	2.72	0.90~1.9
	Emery powder	0.0418	4.00	0.70~2.0

* This is calculated as $\epsilon_c=5.50$ Fig. 1 Correlation of $(U_p / \sqrt{D_p g}) / (\Delta \rho / \rho_f)^{1/8}$ vs. D_p / D_0 in spherical particles Fig. 2 Correlation of $(U_p / \sqrt{D_p g}) / (\Delta \rho / \rho_f)^{1/8}$ vs. D_p / D_0 in non-spherical particles

$$= C(\log D_p / D_0)^2 + 0.20 \log(D_p / D_0) \quad (3)$$

したのが Figs. 1, 2 である。以上の結果より、 $\pm 15\%$ 以内で次のような、諸家の諸実験値の実験的整理式が得られた。

$$(U_p / \sqrt{D_p g}) / (\Delta \rho / \rho_f)^{1/8}$$

ただし、球形粒子群の場合 $C=0.55$ 、非球形粒子群の場合 $C=0.45$ であり、かつ、 D_p / D_0 が $0.25 \sim 0.01$ の範囲について成立する。

既往の諸速度式を比較，検討した結果，本報告の整理式は，従来の諸式に比べて適用範囲がより広く， $\pm 15\%$ 以内の精度で成立する。本整理式は Eq. (3) で与えられる。

Nomenclature

C	= constant	[—]
D_0	= diameter of circular orifices	[cm]
D_p	= average screen size of particles	[cm]
F	= mass flow-rate of particles	[g/sec]
g	= acceleration of gravity	[cm/sec ²]
U_p	= $(F/0.785 D_0^2 \cdot \rho_p)$, apparent particles-rate of flow in orifices	[cm/sec]
ε_c	= void fraction of static packed bed	[—]
μ	= friction factor (= $\tan \Phi_r$)	[—]
ρ_a	= apparent density	[g/cm ³]
ρ_f	= fluid density	[g/cm ³]
ρ_p	= particle density	[g/cm ³]
$\Delta\rho$	= $(\rho_p - \rho_f)$	[g/cm ³]
Φ_c	= shape factor of Carman	[—]
Φ_r	= angle of repose	[°]

Literature cited

- 1) Brown, R. L. and Richards, J. C.: *Trans. Instrn. Chem. Engrs.*, **37**, 108 (1959)
- 2) Fowler, R. T. and Glastonbury, J. R.: *Chem. Eng. Sci.*, **10**, 150 (1959)
- 3) Franklin, F. C. and Johanson, L. N.: *ibid.*, **4**, 119 (1955)
- 4) Igarashi, H.: *Research Reports of the Niigata Univ.*, **13**, 171 (1964)
- 5) Igarashi, H.: *Kagaku Kōgaku*, **32**, 718 (1968)
- 6) Miwa, S.: "Funtaiikogaku Hand Book (Powder Technology H.B.)", 114 Asakura shoten (1965)
- 7) Newton, R. H., Dunham, G. S. and Simpson, T. P.: *Trans. Am. Inst. Chem. Engrs.*, **41**, 215 (1945)
- 8) Rose, H. E. and Tanaka, T.: *The Engineer*, **465**, 10 (1959)
- 9) Shirai, T.: *Kagaku Kikai*, **16**, 86 (1952)
- 10) Sugiura, I.: *J. Appl. Phys.*, **19**, 7 (1950)
- 11) Takahashi, K.: *Research Reports of the Physical Lab-*

oratory, **12**, 984 (1933)

- 12) Tanaka, T. and S. Kawai: *Kagaku Kōgaku*, **20**, 144 (1956)
- 13) Uematsu, T.: *Technology of Chemical Machinery*, **5**, 187 (1953)
- 14) Weighardt, K.: *Ingenieur Archiv*, **20**, 109 (1952)
- 15) Zenz, F. A.: *Petrol. Refiner*, **36**, (4) 173, (10) 162 (1957)
- 16) Zenz, F. A.: *ibid.*, **41**, (2) 159 (1962)

(1973年10月5日受理；化学工学協会第38年会(東京，1973年4月)にて発表)

The Flow-Rate of Granular Solids through Orifice

Nobuetsu Yutani and Sigefumi Fujita

Dept. of Chem. Eng., Tokyo Univ. of Agriculture and Tech., Tokyo

To study on the flow-rate equation, both of author's experimental data and various investigators' were used. These experimental data were correlated by Eq. (1) that derived from dimensional analysis——apparent particle-rate (U_p) through orifice was given as a function of particle diameter (D_p), particle density (ρ_p), fluid density (ρ_f), and orifice diameter (D_0).

$$\begin{aligned} (U_p / \sqrt{D_p g}) / \{(\rho_p - \rho_f) / \rho_f\}^{1/8} \\ = C \{ \log(D_p / D_0) \}^2 + 0.20 \log(D_p / D_0) \quad (1) \end{aligned}$$

For the case of spherical particles, $C=0.55$, of non-spherical particles, $C=0.45$. Nondimensional group (D_p / D_0) is the value between 0.01 and 0.25. Eq.(1) was in good agreement with many and various experimental data. The deviation is the value within $\pm 15\%$.

ノズル出口の粘性速度境界層がインパクターの衝突効率に及ぼす影響

湯 晋一*・三宅 展正
井伊谷 鋼一

京都大学工学部 化学工学科

カスケード・インパクターの分離機構は従来ノズルから噴出する気体流れをポテンシャル流と仮定することによって説明されてきたが^{1,2)}、理論計算値と実験値の一致は充分ではなかった。そこでノズル出口における非圧縮性流体の粘性速度境界層を考慮することによって円形ノズル・インパクターの一層正確な分離機構の解明を以下に行った。

計 算 方 法

ノズル内およびノズル出口気流速度分布概念図をFig. 1に示す。図に示したようにノズル壁上方で粘性境界層ができ、下方にいくにしたがって発達すると考えられる。このノズル出口での気流速度分布を非圧縮性流体の回転体周りの境界層方程式の近似解法³⁾を用いることによって求めた。境界層内の気流速度分布を Eq. (1) のように仮定すると係数 $a_1 \sim a_4$ は無次元数 λ 、本流速度 U および境界層厚さ δ によって Eq. (2) のように表される³⁾。

$$u = a_1 y + a_2 y^2 + a_3 y^3 + a_4 y^4 \quad (1)$$

$$\left. \begin{aligned} a_1 &= \frac{U}{6\delta}(12 + \lambda), & a_2 &= -\frac{U}{2\delta}\lambda, \\ a_3 &= -\frac{U}{2\delta^3}(4 - \lambda), & a_4 &= \frac{U}{6\delta^4}(6 - \lambda) \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

この式から λ を求めるためにはノズル内の本流の速度分布を求める必要があるが、これは Eq. (3) に示したようにノズル断面積に逆比例して流速が変化すると求めた。

$$U = U_0 \left(\frac{D_c}{2r} \right)^2 = \frac{L^2 D_c^2}{4 \left\{ (L-x)R + \frac{D_c}{2}x \right\}^2} U_0 \quad (3)$$

この本流速度の方向であるが、境界層はノズル径に比べて小さいのでノズル壁近傍の流速に限ればよいので、ノズル壁に平行な1次元流れとすることができる。また一般的な回転体周りの λ を求める式は友近³⁾によって求められており、それに Eq. (3) を代入し Eq. (4) に従って無次元化すると円形ノズル内の λ を求める無次元式が Eq. (5) のように求まる。

$$\bar{x} = \frac{x}{D_c}, \quad \bar{r} = \frac{r}{D_c}, \quad \bar{U} = \frac{U}{U_0} \quad (4)$$

$$\frac{d\lambda}{d\bar{x}} = \frac{2\left(\bar{R} - \frac{1}{2}\right)}{\left\{ (\bar{L} - \bar{x})\bar{R} + \frac{\bar{x}}{2} \right\}} \left\{ 4 - \frac{232}{315}\lambda + \frac{79}{3,780}\lambda^2 + \frac{1}{2,268}\lambda^3 \right\}$$

* 九州工業大学 粉体工学研究施設

Fig. 1 Nozzle and velocity distribution at nozzle outlet

$$\begin{aligned} & - \frac{\left(-\bar{R} + \frac{1}{2}\right)}{\bar{r}\bar{L}} \left\{ \frac{\left(\frac{74}{315}\lambda - \frac{2}{945}\lambda^2 - \frac{1}{4,536}\lambda^3\right)}{\left(\frac{37}{315} - \frac{1}{315}\lambda - \frac{5}{9,072}\lambda^2\right)} \right\} \\ & + \frac{3\left(\bar{R} - \frac{1}{2}\right)\lambda^2}{\left\{ (\bar{L} - \bar{x})\bar{R} + \frac{\bar{x}}{2} \right\}} \left\{ \frac{\frac{2}{945} + \frac{1}{2,268}\lambda}{\frac{37}{315} - \frac{1}{315}\lambda - \frac{5}{9,072}\lambda^2} \right\} \\ & + \frac{3\lambda\left(\bar{R} - \frac{1}{2}\right)}{(\bar{L} - \bar{x})\bar{R} + \frac{\bar{x}}{2}} \end{aligned} \quad (5)$$

Eq. (5) を解けばノズル壁の各点における λ の値が求まり、Eqs. (1) および (2) に代入すればノズル内の気流速度分布が y および δ の関数として求まる。また λ の値がわかっているので λ の定義式より δ の値がわかり、ノズル内の気流速度分布が完全に判明する。ただし無次元境界層厚さ $\bar{\delta}$ を求める式は次式となる。

$$\bar{\delta}/D_c = \bar{\delta} = \sqrt{\lambda L \mu / (2(R - D_c) \rho U_0)} \quad (6)$$

Eq. (5) は非線型であるため、解析的に解くことはできないので、電子計算機を用いて数値解を得た。その際境界条件としてノズル入口から粘性速度境界層が発達しはじめるとした値すなわち $\bar{x}=0$ で $\lambda=0$ を用いた。

次に粘性境界層の影響を補正した衝突効率の計算方法を示す。ノズル出口の気流速度分布は Fig. 1 のようになる。Eqs. (1) および (2) を用いてこれを表すと次式のようになる。

$$\begin{aligned} & \bar{r} \geq 0.5 - \bar{\delta} \text{ のとき} \\ & u = \left[\frac{4}{\bar{\delta}}(-\bar{r} + 0.5) - \frac{6}{\bar{\delta}^2}(\bar{r} - 0.5)^2 + \frac{4}{\bar{\delta}^3}(0.5 - \bar{r})^3 \right. \\ & \quad \left. - \frac{1}{\bar{\delta}^4}(\bar{r} - 0.5)^4 \right] U_0 \\ & 0 \leq \bar{r} \leq 0.5 - \bar{\delta} \text{ のとき} \\ & u = U_0 \end{aligned} \quad (7)$$

Fig. 2 Comparison of the experimental and the calculated target collection efficiency

境界層を考慮した場合の U_0 と u_{av} の関係は Eq. (7) を断面にわたって積分し平均をとることによって次式で示される。

$$u_{av} = \left[\frac{4}{15} \bar{\delta}^2 - \frac{4}{5} \bar{\delta} + 1 \right] U_0 \quad (8)$$

Eq. (7) に Eq. (8) を代入し、 u および u_{av} を記号表の定義式に従って Ψ および $\bar{\Psi}$ に変換すれば粘性境界層を考慮した場合の各半径位置での Ψ を u_{av} を基準とした $\bar{\Psi}$ で表せる。たとえば $\bar{r} \geq 0.5 - \bar{\delta}$ のときには次式となる。

$$\Psi = \left[\frac{4}{\bar{\delta}} \left(-\bar{r} + \frac{1}{2} \right) - \frac{6}{\bar{\delta}^2} \left(\bar{r} - \frac{1}{2} \right) - \frac{4}{\bar{\delta}^3} \left(\bar{r} - \frac{1}{2} \right)^3 - \frac{1}{\bar{\delta}^4} \left(\bar{r} - \frac{1}{2} \right)^4 \right] \frac{\bar{\Psi}}{\frac{4}{15} \bar{\delta}^2 - \frac{4}{5} \bar{\delta} + 1} \quad (9)$$

また衝突効率の計算結果と慣性パラメータの関係は著者の前報の結果⁴⁾を用いると次式のように求まる。

$$\left. \begin{aligned} \sqrt{\bar{\Psi}} \geq 0.4 \text{ のとき} \\ \eta_T = \frac{\bar{r}_c^2}{0.25} = 13.78\sqrt{\bar{\Psi}} - 5.131 \\ \sqrt{\bar{\Psi}} \leq 0.4 \text{ のとき} \\ \eta_T = \frac{\bar{r}_c^2}{0.25} = -5.15 + 55.89\sqrt{\bar{\Psi}} - 208.1\bar{\Psi} \\ \quad + 296.3\bar{\Psi}^{3/2} - 97.37\bar{\Psi}^2 \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Eq. (9) の Ψ を Eq. (10) の $\bar{\Psi}$ に、また $\bar{r}$ を粒子が衝突捕集される限界半径 $\bar{r}_c$ に等しいと置いて、 $\bar{r}_c$ を求めれば境界層を考慮した場合の η_T が次式で求まる。

$$\eta_T = \left(\frac{\bar{r}_c}{0.25} \right)^2 \quad (11)$$

したがって粘性境界層を考慮した場合のノズル出口速度分布が判明しておれば、ノズル出口気流速度を一樣流とした場合の理論衝突効率から境界層を考慮した場合の衝突効率を、粒子軌跡を計算することなく求めることができる。ノズル出口の粘性境界層を無視した場合は Fig. 1

Table 1 Experimental conditions⁴⁾

	Nozzle No. 1		Nozzle No. 2	
D_c	0.085	[cm]	0.119	[cm]
R	2.20	[cm]	2.20	[cm]
L	3.55	[cm]	3.50	[cm]

Aerosol: Polystyrene latex
 Diameter of aerosol particle: 1.305 [μ]
 Density of aerosol particle: 1.025 [g/cm^3]
 Number concentration of aerosol: 10~80 [particles/cc]
 Linear gas velocity at nozzle outlet: 11.00~70.00 [m/sec]
 Pressure loss at nozzle and plate: 20~960 [mmH₂O]
 Clearance ratio: 3.0 [—]
 Inertia parameter: $\sqrt{\bar{\Psi}} \left(= \sqrt{\frac{C_p \rho u_{av}}{18 \mu D_c}} D_p \right) = 0.18 \sim 0.72$ [—]
 Reynolds number based on nozzle outlet: $Re_j \left(= \frac{D_c \rho u_{av}}{\mu} \right) = 900 \sim 4,000$ [—]
 Interception parameter: $I \left(= \frac{D_p}{D_c} \right) = 0.0011 \sim 0.0015$ [—]

に示す u_{av} の一樣流で気流がノズルから噴出すると考えていた。したがって粘性境界層を考慮した場合はノズル中心部では一樣流と考えた場合より $U_0 > u_{av}$ であるため、粒子の慣性が大きくなり捕集されやすくなる。しかしノズル周辺部の境界層の内部で、流速が u_{av} より小さくなる部分では一樣流とした場合より粒子は捕集されにくくなる。境界層が存在するノズル周辺部から噴出する粒子が捕集される場合は η_T が大きい場合すなわち $\sqrt{\bar{\Psi}}$ が大きいときである。したがって上述の理由から $\sqrt{\bar{\Psi}}$ の大きいところで衝突効率が流速分布を一樣と仮定したときよりも小さくとなると考えられる。

計算結果および実験値との比較検討

Eq. (5) では実験に使用したノズルの寸法を用いて λ の値を計算した。使用したノズルは2種類でその寸法を Table 1 に示す。 λ の計算結果はいずれのノズルの場合もノズル入口からノズル出口径の5~6倍の所で $\lambda = 12.0$ となり、それよりノズル出口側では λ は一定値に保たれ、ノズル出口ではいずれのノズルの場合も $\lambda = 12.0$ が得られた。したがって Eq. (5) を計算する場合の境界条件、すなわちノズル入口で境界層がないという条件が多少異なってもノズル出口における λ の値にはほとんど影響しないことがわかる。この λ の値と Eqs. (6), (10), (11) を用いて衝突効率の値を計算すると Fig. 2 の実線のようにになる。同図における点線がポテンシャル流、すなわちノズル出口から一樣流でエアロゾルが噴出するとして計算した結果である。実線と点線を比較すると $\sqrt{\bar{\Psi}}$ の大きいところで実線の方が衝突効率が低くなっている。これは前述したように $\sqrt{\bar{\Psi}}$ の大きい所、すなわち η_T の大きい所で、ノズル壁周辺部より噴出した粒子が捕集されるので、境界層の影響で η_T が低く出るわけである。一方る部分に相当する $\sqrt{\bar{\Psi}}$ の小さい所では実線の方が点線

より η_T がわずかながら高く出るのは前述したとおり U_0 が u_{av} より大きいためである。粘性境界層を考慮した効率曲線、すなわち実線は全体として S 字形の曲線として得られる。次にこの計算結果を著者ら⁴⁾ および Ranz ら²⁾ の実験値と比較してみる。著者ら⁴⁾ の実験条件は Table 1 に示してある。同表より実験値はすべて非圧縮領域にあることがわかる。Fig. 2 からわかるように計算値と実験値はよく合っている。ポテンシャル流のみを使用したモデルでは $\sqrt{\bar{\psi}}$ の大きい所が説明されなかったが、この部分も計算結果では実測値をよく説明している。クリアランス比が 1 以下になるとノズル出口の本流速度が一樣流とならないので本計算を直接適用することはできないが、定性的には同様のことがいえることは、クリアランス比が 1 以下の著者らの実験値および計算値⁴⁾ から推察される。

Nomenclature

$a_1 \sim a_4$	= coefficients of polynomial	[1/sec]
C	= Cunningham correction factor	[—]
D_c	= nozzle diameter at outlet	[cm]
I	= interception parameter $= D_p/D_c$	[—]
$\bar{L}$	= dimensionless length of nozzle wall $= L/D_c$	[—]
$\bar{R}$	= dimensionless radius of nozzle inlet $= R/D_c$	[—]
$\bar{r}$	= dimensionless nozzle radius at arbitrary point $= r/D_c$	[—]
$\bar{r}_c$	= dimensionless radius of critical nozzle at outlet $= r_c/D_c$	[—]
U	= gas velocity outside boundary layer	[cm/sec]
U_0	= gas velocity outside boundary layer at nozzle outlet	[cm/sec]
U_x	= component of gas velocity outside boundary layer	[cm/sec]
u_{av}	= average gas velocity at nozzle outlet	[cm/sec]
x, y	= co-ordinates	[cm]
$\bar{x}, \bar{y}$	= dimensionless co-ordinates	[—]
η_T	= target collection efficiency	[—]
$\bar{\delta}$	= dimensionless boundary thickness $= \delta/D_c$	[—]

λ	= dimensionless number $= (\delta^2 \rho / \mu) (dU/dx)$	[—]
ρ, ρ_p	= fluid and particle densities	[g/cm ³]
μ	= fluid viscosity	[g/cm·sec]
Ψ	= inertia parameter $= (C \rho_p u / 18 \mu D_c) D_p^2$	[—]
$\bar{\Psi}$	= average inertia parameter $= (C \rho_p u_{av} / 18 \mu D_c) D_p^2$	[—]

Literature cited

- 1) Davies, C.N. and M. Aylward: *Proc. Phys. Soc.*, **64 B**, 889 (1951)
- 2) Ranz, W.E. and J.B. Wong: *Ind. Eng. Chem.*, **44**, 1371 (1952)
- 3) Tomotika, S.: A. R. C. R. and M., **1678** (1935)
- 4) Yuu, S. and K. Iinoya: *Kagaku Kōgaku*, **34**, 427 (1970)

(1974 年 1 月 25 日受理)

Effect of the Velocity Boundary Layer at the Nozzle Outlet on the Target Collection Efficiency of an Impactor

Shinichi Yuu*, Norimasa Miyake
and Koichi Iinoya

Dept. of Chem. Eng., Kyoto Univ., Kyoto

Separation mechanism of a cascade impactor has been studied by use of a potential flow model. There is however, some discrepancy between the theoretical and the experimental results so far. Target collection efficiency, taking into account the velocity boundary layer of incompressible fluid at the nozzle outlet, is calculated and compared with the experimental value. The theoretical curve is in good agreement with the experimental values even in a range of higher efficiency, and seems to explain the separation mechanism satisfactorily.

* Kyushu Inst. of Tech.

ミキサセトラ抽出装置の制御法則の検討

加藤 尚武・池田 秀松*

清瀬 量平・山本 寛

東京大学工学部 原子力工学科

多数の抽出器からなる化学プロセス、あるいは核燃料再処理プロセスなどでは、起動制御、定値制御、停止制御によって、安定な運転、起動、停止時間の短縮、製品の高回収率維持などが期待できる。

この場合、操作変数としては、流量をとるのが実際的である。しかしながら、抽出器の動特性モデルは、微分方程式モデル¹⁾、差分方程式モデル²⁾、あるいは微分差分方程式モデル³⁾などが報告されているが、いずれの場合も、流量を操作変数とすると非線形モデルとなり、Ziegler, Nichols らに代表される、簡便な PID 制御法則の設計、すなわち調節計のパラメータの決定は困難になる。

われわれは、非線形プロセスの制御法則の設計という点に注目して、最適制御理論および帰帰分析を利用して線形フィードバック制御法則を求める方法について検討した。そして、6 段からなるミキサセトラを例にとり、この制御法則を用いて DDC 実験を行った。

非線形プロセスのフィードバック制御

抽出器は、微分差分方程式モデルに基づいた、次の差分方程式によって表現されるものとする。

$$\begin{aligned}x_i(n+1) = & a_0 \cdot x_i(n) + a_1 \cdot x_{i-1}(n+1-M) \\ & + a_2 \cdot x_{i-1}(n-M) + a_3 \cdot x_{i+1}(n-M) \\ & + a_4 \cdot x_i(n-2M) + a_5 \cdot y_i^f(n) \\ & (i=1 \sim I) \quad (1)\end{aligned}$$

$a_0 \sim a_5$ は、ミキサ部のホールドアップ、流量、サンプリング周期 τ で決まる係数である⁴⁾。

実際の濃度を表すベクトルを $\mathbf{x}(n)$ 、ダミーベクトルを $\mathbf{d}(n)$ とすれば、Eq. (1) は次の標準形に書き直すことができる。

$$\mathbf{z}(n+1) = \mathbf{f}\{\mathbf{z}(n), w(n+1)\} \quad (2)$$

ただし、

$$\mathbf{z}(n) = \begin{bmatrix} \mathbf{x}(n) \\ \mathbf{d}(n) \end{bmatrix} \quad (3)$$

であり、 $w(n)$ は操作変数として選んだ水相流量である。

評価関数を次のようにとる。

$$J(w) = \sum_{n=1}^{\infty} \left[\sum_{i=1}^I \lambda_i \{x_i(n)/x_i^e - 1\}^2 + \{w(n+1) - w^e\}^2 \right] \quad (4)$$

すなわち、 $i=1 \sim I$ 段の定常濃度からの偏差の 2 乗の和

をできるだけ小さくしようという意図である。

Eq. (2) で支配される系について、Eq. (4) を最小にする $w(n)$ を離散形最大原理⁵⁾によって求めると、Eq. (5) のオープンループ形の最適制御法則が得られる。

$$w(n+1) = g\{\mathbf{z}(n), n\} \quad (5)$$

しかし、実際のプラントに適用する制御法則にフィードバック性を欠かすことはできないといわれている。

そこで、Eq. (5) をフィードバック形に近似することを考える。

もし、Eq. (2) が線形系であれば、Eq. (4) を最小にする最適制御法則は、 n に独立な線形フィードバック制御法則となることが知られている⁶⁾。このことから、Eq. (5) を次式で近似することにする。

$$w(\mathbf{z}) = w^* + \mathbf{B} \cdot \{\mathbf{z}(n) - \mathbf{z}^e\} \quad (6)$$

すなわち、

$$w(\mathbf{z}) = w^* + \sum_{i=1}^I \sum_{j=1}^N b_{ij} \cdot x_i(n-j \cdot \tau) \quad (7)$$

において、Eq. (5) を十分な精度で近似する b_{ij} を求める問題を考える。

$N=0$ の場合は、Eq. (2) が線形の場合の最適制御法則の形となる。 N を大きくすることは積分動作を加えることに相当するが、これにより非線形性を考慮し、Eq. (5) をうまく近似できることが期待される。

b_{ij} は、重回帰分析⁷⁾により求める。近似の良さの尺度としては、重回帰係数の 2 乗、 R^2 、あるいは推定量の標準誤差、 s を用いて、 R^2 が十分 1 に近くなるまで、あるいは s が十分ゼロに近くなるまで、 N を増加させていく。

したがって、Fig. 1 のフローチャートによって、非線形プロセスのフィードバック制御法則の設計が行える。

ミキサセトラの DDC 実験

6 段からなるミキサセトラを制御対象として選ぶ。実験には、ヘプタノール-酢酸-水系を使用している⁴⁾。

最適な検出段⁸⁾は、4, 5, 6 段にあることが予想されるが、これらの段での酢酸濃度はきわめて微小で、正確な検出ができないので、Eqs. (4), (7) で $I=3$ とした。

Eq. (4) で、 $\lambda_i=50$ ($i=1 \sim 3$) とし、最大原理および重回帰分析を用いて、Eq. (7) の b_{ij} を求めたところ、 R^2 および s は Table 1 のようになった。Eq. (5) の曲線がなめらかで、それほど非線形性が強くないので、 $N=0$ ですでにかなり良好な近似が得られていることがわかる。

$N=4$ として、実際に DDC 実験を行った結果の一例を Fig. 2 に示す。明らかに、制御なしのときに比べて、制御性は改善されている。さらに、オープンループ形の制御法制では期待できない外乱やモデルの誤差に対する回復能力のあることが、DDC 実験によって確かめられた。

* 東京大学原子力研究総合センター

Fig. 1 Flowchart for calculation of feedback control law

Fig. 2 は、初期値 $z(1)=0$ の場合であるが、非線形系であるために、制御法則 Eq. (7) は初期値 $z(1)$ に依存する。しかし、この場合、離散形最大原理および重回帰分析に要した計算時間は、HITAC 8,700/8,800 の場合、約 5sec で、ミキサセトラの制御には無視できる時間である。したがって、任意の初期値 $z(1)$ が与えられて、Eq. (7) の b_{ij} を求めるまで、オンライン計算を行うことができる。

結論

非線形プロセスの制御では、最適制御理論によって制御法則が得られても、それがオープンループ形であるために実プロセスへの適用を困難にしている。このため、オープンループ形の最適制御法則をフィードバック形の準最適制御法則に近似し、6段からなるミキサセトラによって DDC 実験を行ったところ、良好な結果が得られた。特に、オープンループ形の制御法則では得られない、外乱、モデルの誤差などに対する回復能力は、この準最適フィードバック制御の実プロセスへの適用を可能にしている。

本設計法とは別に、はじめから Eq. (7) に相当する制御法則の関数形を固定して、Eq. (4) のような評価関数を最小にするパラメータを探索する方法がある。両者の比較は一概にはできないが、パラメータの数を多くする必要があるときは、勾配法などによる探索は最適解への収束がむずかしくなり、また計算時間もかかるので、本設計法の方が有利といえよう。

Nomenclature

$a_0 \sim a_5$	= coefficient defined by Eq. (1)	[—]
B	= feedback matrix	
b_{ij}	= regression coefficient	[l/hr/mol/hr]
d	= dummy vector	
M	= T/τ	[—]

Fig. 2 Effect of DDC on the responses of mixer settler

Table 1 Effect of N on the goodness of fit

N	R^2	s
0	0.9467	0.2397
1	0.9914	0.0980
2	0.9952	0.0743
3	0.9964	0.0654
4	0.9966	0.0537

R	= multiple correlation coefficient	
s	= standard error of dependent variable	
T	= dead time per stage	[min]
w	= aqueous flow rate	[l/hr]
w^*	= constant flow rate defined by Eq. (6)	[l/hr]
x	= aqueous concentration of CH_3COOH	[mol/l]
y	= organic concentration of CH_3COOH	[mol/l]
z	= state of the system defined by Eq. (3)	
λ	= constant defined by Eq. (4)	
τ	= sampling interval	[min]
<Subscript>		
i	= stage number	
<Superscripts>		
e	= steady state	
f	= feed	

Literature cited

- 1) Biery, J.C. and D.R. Boylan: *I&EC Fundamentals*, **2**, 44 (1963)
- 2) Draper, N.R. and H. Smith: "Applied Regression Analysis", Morikita Shuppan, Tokyo (1968)
- 3) Fan, L.T. and C.S. Wang: "The Discrete Maximum Principle", John-Wiley, (1964)
- 4) Katoh, N., H. Ikeda, R. Kiyose and Y. Yamamoto: *Kagaku Kōgaku*, **38**, 4 (1974)
- 5) Lee, H.H., L.B. Koppel and H.C. Lin: *I&EC Process Design and Development*, **12**, 1 (1973)
- 6) Lowe, J.T.: *I&EC Process Design and Development*, **1**, 3 (1968)
- 7) Tou, J.: "Optimum Design of Digital Control Systems", Academic Press (1963)

(1974年8月3日受理；化学工学協会第6回秋季大会(東京, 1972年11月)にて発表)

Direct Digital Control of a Pump Mix Mixer-Settler System

Naotake Katoh, Hidematsu Ikeda*,
Ryohei Kiyose and Yutaka Yamamoto
Dept. of Nucl. Eng., Univ. of Tokyo, Tokyo

Taking a quadratic performance index, an optimal control problem for the system represented by differential-difference equations model is solved by using

the discrete maximum principle. And the open loop type optimal control law, thus obtained, is approximated by a more practicable feedback control law.

For the 6-stages mixer settler system, the implementation of DDC by using the feedback control law shows a satisfactory performance due to the compensation of errors involved in the system model and disturbances.

* Research Center for Nucl. Sci. and Tech., Univ. of Tokyo, Tokyo

~~~~~