

工学系のプロセス自由度について

A Note on Degrees of Freedom for an Engineering Process

梅 谷 陽 二

Yoji UMETANI

本報は工学系におけるプロセス自由度の一般的な算定法とその応用について述べたものである。

1. プロセス自由度の意義

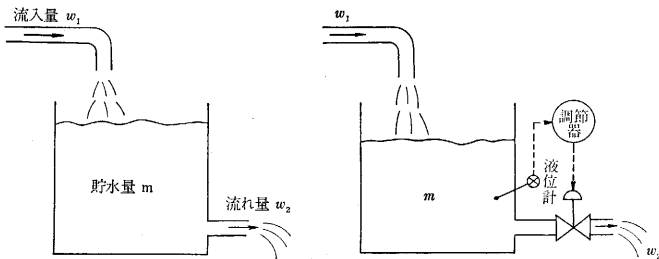
ある工学系の状態を記述するのに必要な量をプロセス変量と呼ぶ。プロセス変量間にはその工学系によっていくつもの拘束が内在する。これらの拘束を差し引いた残りのプロセス変量の数をプロセス自由度といい、これは系外から独立に操作可能なプロセス変量の数を表わす。したがって、プロセス自由度の数だけのプロセス変量を系外から規定すれば、その工学系は完全に整定されることになる。

たとえば図・1(a)に示される工学系を完全に整定することを考えてみる。この流れ系のプロセス変量は3個(w_1, w_2, m)であるが、このうち流量 w_2 と貯水量 m との間には水力学的な関係式が成立している。また、流量 w_1 はたとえば河川からのダムへの流入に見られるような操作不能な変量であるとする。その結果、この系のプロセス変量間の拘束条件は2個となるから、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、それを自動的に行なうには図・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を与えるものでもある。

2. 熱力学的考察の必要性

プロセス自由度に関する従来の研究はすべて平衡系に限られていた。すなわち、示強変量の自由度については



(a) プロセス自由度 = 1 の系 (自由系), ただし $w_2 \ll m^2$
(b) プロセス自由度 = 0 になった系 (整定系)

図・1 制御系の付加によりプロセス自由度を減少させる例

有名な Gibbs の相律があり、示量変量を含めた自由度については Duhem の定理がある。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いうまでもない。ところが工学系への応用を試みると、これらの定理には原理的にある限界があることを深く認識せねばならない。

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上述の平衡系に関する定理を適用することはごく限られた場合にしか通用しない。結晶プラントは上述の定理がまったく適用できない好例である。たとえば Gibbs の相律をそのまま適用しよう。相律の式

$$f=2+c-r-\phi \quad (1)$$

(f : 自由度, c : 成分の数, r : 反応の数, ϕ : 相の数) にもとづいて、結晶プラントを2成分を含み3相共存の一つの閉鎖系と見なすとその示強変量に関する自由度は

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

となり、この結果は結晶プラント操業の立場から判断してまったく非現実的である。(5節参照のこと)

反応器に見られるように、工学系の内部において物質およびエネルギーは常に流動し変化しつづけていると考えねばならないから、工学系は一般に非平衡系として取り扱わねばならない。また、系が安定である限り系内のいくつかの変量を系外から規定すれば、系は必ず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定常非平衡系を対象にして考察せねばならない。なお、この線に沿って得られる次節の算定式は、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¹⁾²⁾などを包含することは次第に明らかになる。

3. プロセス自由度の算定

定常非平衡系の熱力学的な取扱いはエントロピー生成極小の定理³⁾に立脚して行なうことができる。また、ここ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、同一相内の状態はいたるところ一様であるとする*。

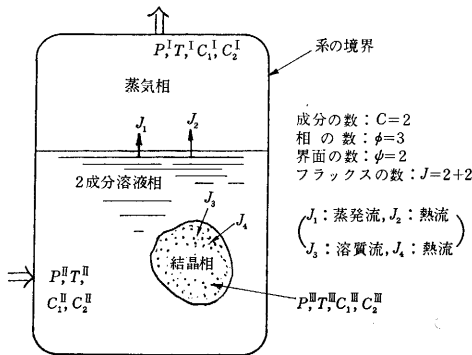
*より基礎的な連続系としての取扱いは、殊尾他、「定常状態における熱力学系の自由度について」本誌 p.21 参照のこと

研 究 速 報

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

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

ここで添字は定常状態の次数をあらわす。図・2を参照して、以下の記号を定める。系に含まれる成分の数： 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フラックスの数： J ，



図・2 記号説明のための例

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、一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 $(2+c)$ 個を定めれば必要十分だから ϕ 個の相について合計すれば

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

示量変数については、各相の総重量が定まれば系全体の重量が規定されるから、その数は

$$\phi \quad (b)$$

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、粘性流、 C 個の成分の拡散流、 r 個の反応過程のこれらの和として与えられるから $(2+c+r)$ 個である。ゆえに ϕ 個の界面に対して

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

(a)(b)(c)の和が一般的なプロセス変数の必要十分な数 F_p である。

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

つぎに k 次の定常状態における拘束条件の数 R_k を求める。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つから、その数は

$$\phi \quad (d)$$

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

の数は

$$\phi \quad (e)$$

定常条件は次の現象方程式をもとにして熱力学的に導くことができる。フラックス J_i は駆動力 X_i の1次結合で表現することができ、これを現象方程式と呼ぶ⁴⁾⁵⁾。

$$\begin{pmatrix} J_1 \\ J_2 \\ \vdots \\ J_{2+c+r} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} L_{11} & L_{12} & L_{1,2+c+r} \\ L_{21} & L_{22} & L_{2,2+c+r} \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ L_{2+c+r,1} & L_{2+c+r,2} & L_{2+c+r,2+c+r} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_1 \\ X_2 \\ \vdots \\ X_{2+c+r} \end{pmatrix} \quad (4)$$

ここで駆動力 X_i は界面をはさむ2相の示強変数の勾配で表わすことができる量である。また (L_{ij}) は定係数と考えて差支えない。さて完全な定常状態とは $(2+c+r)$ 個のフラックスがすべて定値である状態であり、この状態を実現するためには必然的にすべての駆動力 $X_i (i=1, 2, \dots, 2+c+r)$ はある定値に固定されていなければならない。また k 次の定常状態とは k 個のフラックスだけが定値に保たれている状態と定義されている。熱力学の教える所によると、 k 次の定常状態において定値のフラックス $J_i (i=1, 2, \dots, k)$ 以外のフラックス $J_i (i=k+1, \dots, 2+c+r)$ はすべて0に収斂し、さらに固定しなかった駆動力 $X_i (i=k+1, \dots, 2+c+r)$ は固定した駆動力 $X_i (i=1, 2, \dots, k)$ の関数として表現することができる。以上をまとめると、 k 次の定常条件の数は

$$(2+c+r-k) + (2+c+r-k) + k - 1 = 3+2c+2r-k$$

ゆえに各界面についての総和を求めると

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

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。

$$R_k = \phi + \phi + \sum_{i=1}^{\phi} (3+2c+2r-k_i)$$

$$= \phi + \sum_{i=1}^{\phi} (4+2c+2r-k_i) \quad (5)$$

(3)式および(5)式を(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。

$$F_k = (3+c)\phi + (2+c+r)\phi - \phi - \sum_{i=1}^{\phi} (4+2c+2r-k_i)$$

$$= (2+c)\phi - \sum_{i=1}^{\phi} (2+c+r-k_i) \quad (6)$$

これがプロセス自由度の算定式である。

4. 考 察

(6)式で得たプロセス自由度の算定式を吟味してその妥当性を検証し、適用例を示そう。

定常性の次数 k_i は各界面について任意に与えることができる。ただし、 k_i の値はせいぜいフラックスの数までしかとれない。すなわち(c)を参照して

$$k_i = 0, 1, 2, \dots, 2+c+r, \quad (i=1, 2, \dots, \Psi) \quad (7)$$

いま、完全な定常状態のプロセス自由度を求めるにはす

すべての次数 k_i を, $k_i=2+c+r$ ($i=1, 2, \dots, \phi$) と置けばよい. ゆえにこの場合のプロセス自由度は

$$F_{2+c+r}=(2+c)\phi \quad (8)$$

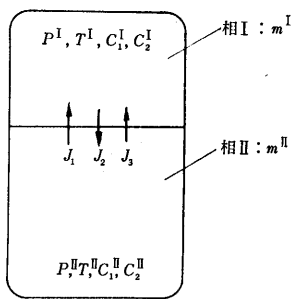
となる. また逆に, 系のすべてのプロセス変量になんらの規定も行わず放置したとすると, 系は過渡状態を経たのち平衡の状態に収斂してゆく. これは 0 次の定常状態と考えることができるから, (6) 式に $k_i=0$ ($i=1, 2, \dots, \phi$) を適用すれば平衡状態のプロセス自由度 F_0 は

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

となる.

ここでごく簡単な 2 成分 2 相系を例にとり, (8)(9) 式で示される両極限状態の値が従来の算定式などに照らして矛盾のないことを確かめ, (6) 式の妥当性を見る一つの証左としよう. いま図・3 のような系を考える. この系は, $c=2, \phi=2, r=0, \psi=1$ である. (6) 式によると, このプロセス自由度は

$$F_k=(2+2)2-(2+2+0-k)=4+k \quad (10)$$



まず完全な定常状態が実現するためには, 次数 k にとり得る最高のフラックスの数を与えればよい. もしかりに系が槽式反応器にみられるように $P^I=P^II$ の状態にあるとすれば, 界面を通過するフラックスの数は 3, すなわち熱流と 2 つの物質拡散流である. そこで, $k=3$ がこの場合の完全定常条件であるから,

$$F_3=4+3=7$$

となる. たとえば次の 7 個のプロセス変量 $\{T^I, T^II, C_1^I, C_1^II, m^I, m^II, P^I(=P^II)\}$ を規定すれば系は完全な定常状態に整定することは明らかである.

つぎに平衡状態は 0 次 ($k=0$) の定常状態であるから, そのときのプロセス自由度 F_0 は

$$F_0=4 \quad (11)$$

平衡状態においては Gibbs の相律が同時に成立するから, (11) 式に示された 4 個のプロセス自由度の選定には当然それを考慮すべきである. Gibbs の相律によると, 2 成分 2 相系の示強変量の自由度 f は

$$f=2+c-\phi=2$$

であるから, 結局選び得るプロセス自由度の組み合わせは, 2 個の示強変量と 2 個の示量変量, たとえば $\{T^II, C_1^II, m^I, m^II\}$ である. この平衡状態における結果もまた物理化学的にみて矛盾がないことは明らかである.

5. 応 用 例

すでに第 1 節で説明したとおり, 工学系を制御するというは, とりも直さずその系のプロセス自由度を減小させて任意の定常状態に整定することである. 系が単純な場合は別段プロセス自由度などの算定を行なわずとも, 直観的に必要な数だけ制御系統を設けることができる. しかし化学プラントなどの現象的に複雑なプロセスに対しては, (6) 式で得た算定式にもとづいてプロセス自由度を明確に把握しなければならない.

半回分式の真空結晶缶を例にとる. このプロセスの制御は経験的に 2 系統もしくは 3 系統で行なわれている. さて母液中に分散している結晶粒子群は一つの相と考えて差支えないから, このプラントを図・2 のようにモデル化して考える. 系の構成は $c=2, \phi=3, r=0, \psi=2$ であるから, (6) 式より

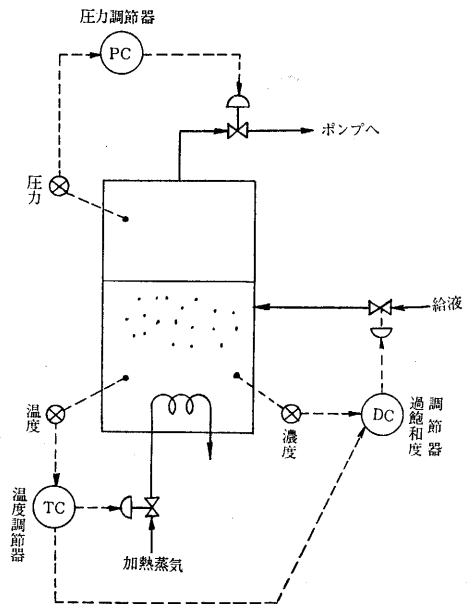
$$F_k=(2+2) \cdot 3 - \sum_{i=1}^2 (2+2-k_i) = 4+k_1+k_2 \quad (12)$$

真空結晶缶の操作は母液の蒸発速度と溶質の結晶面への晶出速度を制御しながら行なわれるから, この 2 個のフラックスの定常性が要求される. ゆえに, $k_1=1, k_2=1$ とおけば (12) 式によって, プロセス自由度は

$$F_{1,1}=4+1+1=6 \quad (13)$$

であることがわかった. しかるに, このプロセスには, $T^II=T^III, P^I=P^II=P^III$ この 3 つの等式が近似的に成立していると考えられるから, 実質的なプロセス自由度は $6-3=3$ である. ゆえに, 真空結晶缶の実質的なプロセス自由度は 3 であり,

(23 ページへつづく)



図・4 整定された系 (図・2)

研究速報

$$f=(n-r)+2-(n-r)=2 \quad (19)$$

となり, Duhem の式が導かれる.

5. 定常状態到達の時間

以上定常状態および平衡状態にある系の自由度について論じたが, 実際の系に対してこの規則を適用するとき, 系が外部変数からの摂動に対して定常条件を満たすための時間的余裕をもつことが必要とされる. この問題は, 不可逆変化の駆動力 X の時間的変化を追うことによって明らかにされる.

一般に, 力 X_i の時間変化は次式によって与えられる¹⁰⁾.

$$\frac{dX_i}{dt} = \frac{X_i + h_{T,p}}{T} \frac{dT}{dt} - v_{T,p} \frac{dp}{dt} + \sum_j a_{T,p}^{i,j} \frac{d\xi_j}{dt} \quad (20)$$

ここで,

$$h_{T,p} = \left(\frac{\partial H}{\partial \xi_i} \right)_{T,p}, \quad v_{T,p} = \left(\frac{\partial V}{\partial \xi_i} \right)_{T,p}, \quad a_{T,p}^{i,j} = \left(\frac{\partial X_i}{\partial \xi_j} \right)_{T,p} \quad (21)$$

であり, ξ_i は変化 i の進行度である. さらに, すでに示したように線形現象方程式は次のように書かれる.

$$J_i = d\xi_i/dt = \sum_j L_{ij} X_j \quad (22)$$

ここでは簡単のため, 二つの変化を考え, さらに T, p 一定とすると, (20) は,

$$\left. \begin{aligned} \frac{dX_1}{dt} &= a_{T,p}^{1,1} \frac{d\xi_1}{dt} + a_{T,p}^{1,2} \frac{d\xi_2}{dt} \\ \frac{dX_2}{dt} &= a_{T,p}^{2,1} \frac{d\xi_1}{dt} + a_{T,p}^{2,2} \frac{d\xi_2}{dt} \end{aligned} \right\} \quad (23)$$

ここで係数の相反性から, $a_{T,p}^{2,1} = a_{T,p}^{1,2}$ となる. また (22) は

$$\left. \begin{aligned} J_1 &= d\xi_1/dt = L_{11} X_1 + L_{12} X_2 \\ J_2 &= d\xi_2/dt = L_{21} X_1 + L_{22} X_2 \end{aligned} \right\} \quad (24)$$

となる.

さて, $t=0$ 以降で, X_1 をある値 X_1^0 に固定したとする. このとき, $dX_1/dt=0$ から,

$$a_{T,p}^{1,1}=0, \quad a_{T,p}^{1,2}=a_{T,p}^{2,1}=0,$$

よって (23) の第一式は 0 となり, (23) の第二式, (24) から, この条件で,

$$\frac{dX_2}{dt} = a_{T,p}^{2,2} (L_{21} X_1^0 + L_{22} X_2) \quad (25)$$

となる. この式を積分し, 初期条件 $t=0$ で $X_2 = X_2^0$ を与えれば,

$$X_2 = \frac{L_{12} X_1^0 + L_{22} X_2^0}{L_{22}} e^{-t/\tau_2} - \frac{L_{12}}{L_{22}} X_1^0 \quad (26)$$

ここで

$$\tau_2 = -1/(a_{T,p}^{2,2} L_{22}) \quad (27)$$

は, 考えている変化の緩和時間である.

(26) から, X_1 を任意の値に固定してから, X_2 が定常値 $-(L_{12}/L_{22})X_1^0$ に達するまでの時間は, 緩和時間 τ_2 によって特徴づけられることが明らかである.

以上の取扱いは, Prigogine による平衡状態への接近の問題¹⁰⁾を, 定常状態の場合に拡張したものであるが, これから定常状態に到達するための緩和時間が, 平衡状態の場合と同じ表現で与えられることが明らかにされる. (1966年5月6日受理)

文 献

- 1) J. W. Gibbs, Collected Works, 2 vols, New York (1928).
- 2) P. Duhem, Traité élémentaire de Mécanique chimique, 4 vols, Paris (1899).
- 3) P. Duhem, J. Phys. Chem., 2, 31 (1898).
- 4) I. Prigogine, "Introduction to Thermodynamics of Irreversible Processes," 2nd Ed., Interscience Publishers, New York p. 76, (1961).
- 5) D. D. Fitts, "Nonequilibrium Thermodynamics," McGraw-Hill, New York (1962), p. 29; 妹尾 学 "不可逆過程の熱力学序論", 東京化学同人 p. 90, (1964).
- 6) 文献 4), p. 55.
- 7) S. R. de Groot, "Thermodynamics of Irreversible Processes," North Holland, Amsterdam p. 195, (1951).
- 8) 鈴木 喬, 妹尾 学, 山辺武郎, 日化, 投稿中.
- 9) I. Prigogine, R. Defay, "Chemical Thermodynamics," Longmans Green, London p. 186, (1950).
- 10) 文献 9), p. 291.

(26 ページよりつづき)

したがって適当な 3 個のプロセス変量を制御すれば定常的な操業ができることがわかった. 具体的なプロセス変量の選定は系の実情に応じて行なうべきもので, この例では {母液温度, 母液濃度, 蒸気相圧力} の三つをとっている. 図・4 にそのフローシート例を示した.

工学系のプロセス自由度の算定式(6)を誘導し, プロセス制御への応用例を示した.

本研究にあたって本学森政弘助教授および妹尾学博士の御指導を得た. 謝意を表する. (1966年5月6日受理)

文 献

- 1) Gilliland, E. R., C. E. Reed, "Degrees of Freedom in Multicomponent Absorption and Rectification Columns," I. E. C., 34, 5, p. 551 (1942).
- 2) Kwauk, M., "A System for Counting Variables in Separation Processes," A. I. Ch. E., 2, 2, p. 240. (1956).
- 3) たとえば Prigogine, I., "Introduction to Thermodynamics of Irreversible Processes" 2nd ed., Interscience Publishers, N. Y., p. 76, (1961).
- 4) たとえば Fitts, D. D., "Nonequilibrium Thermodynamics," McGraw-Hill, N. Y., p. 29 以下 (1962).
- 5) 妹尾学, "不可逆過程の熱力学序論", 東京化学同人, p. 90 以下 (1964).