



รายงานวิจัยฉบับสมบูรณ์

โครงการการออกแบบร่วมกับการอพติไมเซชันเพื่อเพิ่มสมรรถนะของ
กระบวนการตกผลึก

โดย ดร. วรณี แสงจันทร์

มีนาคม 2554

รายงานวิจัยฉบับสมบูรณ์

โครงการการออกแบบร่วมกับการอพติไมเซชันเพื่อเพิ่มสมรรถนะของกระบวนการตก ผลึก

ผู้วิจัย

สังกัด

1. ดร. วรณี แผงจันทิก

ภาควิชาวิศวกรรมเคมี คณะวิศวกรรมศาสตร์
มหาวิทยาลัยธรรมศาสตร์

2. ผศ.ดร. อมรชัย อาภรณ์วิชานพ

ภาควิชาวิศวกรรมเคมี คณะวิศวกรรมศาสตร์
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สนับสนุนโดยสำนักงานคณะกรรมการการอุดมศึกษา และสำนักงานกองทุนสนับสนุนการวิจัย
(ความเห็นในรายงานนี้เป็นของผู้วิจัย สกอ. และสกว. ไม่จำเป็นต้องเห็นด้วยเสมอไป)

Abstract

Project Code : MRG5280109
Project Title : Integrated Design and Optimization for Improving the Performance of a Crystallization Process
Investigator : Dr. Woranee Paengjuntuek
Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering,
Thammasat University
E-mail Address : pworanee@engr.tu.ac.th
Project Period : 16 March 2009 – 15 March 2011

Crystallization is an important separation process due to its ability to provide high purity product. The control of size and shape distributions of crystal product is known to be a difficult and challenging task. Although various model-based control strategies have been widely implemented, the effectiveness of such the control strategies depends heavily on the exact knowledge of crystallization. For this reason, a neural network-based optimal control was proposed in this research to regulate the batch crystallization. Moreover, crystallization can generally be operated in continuous and batch modes. Although continuous operation is often regarded as the ideal procedure for many processes, it is not always true for crystallization processes. In this research, a novel semi-batch cooling crystallization in which solution is continuously fed to the crystallizer is studied. An integrated design and optimization is proposed for improving the performance of the crystallization process for the production of potassium sulfate as a case study. The aim of the proposed strategy is to determine an optimal operating policy in terms of cooling temperature and solution feed for improving the product quality of the cooling crystallization.

Keywords : Cooling Crystallization; Neural Network; Optimization; Potassium sulfate

บทคัดย่อ

รหัสโครงการ : MRG5280109
ชื่อโครงการ : การออกแบบร่วมกับการอพติไมเซชันเพื่อเพิ่มสมรรถนะของกระบวนการตกผลึก
ชื่อนักวิจัย : ดร.วราณี แสงจันทร์
ภาควิชาวิศวกรรมเคมี คณะวิศวกรรมศาสตร์ มหาวิทยาลัยธรรมศาสตร์
E-mail Address : pworanee@engr.tu.ac.th
ระยะเวลาโครงการ : 16 มีนาคม 2552 ถึง 15 มีนาคม 2554

การตกผลึกเป็นกระบวนการแยกสารหรือการทำให้สารบริสุทธิ์ที่มีความสำคัญกระบวนการหนึ่งเนื่องจากสามารถทำให้สารที่ได้มีความบริสุทธิ์สูง และเป็นที่ยอมรับว่าการควบคุมขนาดและรูปร่างของผลึกผลิตภัณฑ์นั้นมีความยากและท้าทายมาก ถึงแม้ว่าจะมีการนำวิธีการควบคุมหลายวิธีมาใช้ แต่เนื่องจากการควบคุมเหล่านั้น ทำการออกแบบการควบคุมโดยใช้แบบจำลองทางคณิตศาสตร์ของกระบวนการ เนื่องด้วยสาเหตุเหล่านี้ งานวิจัยชิ้นนี้จึงทำการศึกษาออกแบบการควบคุมกระบวนการตกผลึกโดยใช้เทคนิคโครงข่ายประสาทเทียม นอกจากนี้การดำเนินงานของกระบวนการตกผลึกนั้นสามารถทำได้ทั้งแบบต่อเนื่องและแบบแบตช์ ถึงแม้ว่าการดำเนินงานแบบต่อเนื่องจะเป็นที่นิยมใช้สำหรับการผลิตโดยทั่วไป แต่สำหรับกระบวนการตกผลึกนั้นอาจจะไม่เหมาะสมนัก ดังนั้นงานวิจัยนี้จึงทำการศึกษาออกแบบการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์ซึ่งจะทำการป้อนสารละลายเข้าสู่กระบวนการอย่างต่อเนื่อง ร่วมกับการใช้เทคนิคการอพติไมเซชันในการหาสภาวะการดำเนินงานที่สามารถเพิ่มประสิทธิภาพของกระบวนการตกผลึก โดยใช้กระบวนการตกผลึกของสารละลายโพแทสเซียมซัลเฟตเป็นกรณีศึกษา โดยมีวัตถุประสงค์เพื่อหารูปแบบสภาวะการดำเนินงานของอุณหภูมิ และอัตราการป้อนสารละลายเข้าสู่กระบวนการที่เหมาะสมเพื่อเพิ่มคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์จากกระบวนการตกผลึกแบบลดอุณหภูมิ

คำหลัก : การตกผลึกแบบลดอุณหภูมิ โครงข่ายประสาทเทียม การอพติไมเซชัน โพแทสเซียมซัลเฟต

Executive Summary

ในกระบวนการตกผลึกแบบเบตซ์นั้น การควบคุมค่าการกระจายตัวของขนาดและรูปร่างของผลึกผลิตภัณฑ์เป็นสิ่งที่ยากและมีความท้าทาย แม้ว่าจะมีการนำเทคนิคการควบคุมกระบวนการมาใช้ อย่างแพร่หลาย แต่ว่าประสิทธิภาพของการควบคุมนี้ขึ้นอยู่กับความถูกต้องของแบบจำลองทางคณิตศาสตร์ และข้อมูลของกระบวนการที่นำมาใช้ เนื่องจากกระบวนการตกผลึกเป็นกระบวนการที่มีพฤติกรรมทางพลวัตซับซ้อนและมีความไม่เป็นเชิงเส้นสูง จึงทำให้ยากแก่การสร้างแบบจำลองทางคณิตศาสตร์ที่สามารถนำมาแทนพฤติกรรมของกระบวนการจริงได้ ดังนั้นงานวิจัยนี้จึงนำเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียม (Artificial Neural Network) มาประยุกต์ใช้ร่วมกับเทคนิคการควบคุมกระบวนการ โดยใช้กระบวนการตกผลึกของสารละลายโพแทสเซียมซัลเฟตมาเป็นกรณีศึกษา ซึ่งเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมนี้จะถูกนำมาใช้ในการประมาณค่าที่นอกเขตของความเข้มข้นสารละลายและโมเมนต์อันดับสามของกระบวนการ ซึ่งค่าโมเมนต์นี้สามารถบอกถึงคุณภาพผลึกในเทอมปริมาตรรวมของผลึกได้ จากนั้นเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมนี้จะถูกใช้ร่วมกับการควบคุมแบบออปติมอล (Optimal control) เพื่อคำนวณหาสภาวะอุณหภูมิในการดำเนินงานที่เหมาะสมที่จะเพิ่มคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ได้ ผลจากการศึกษาแสดงให้เห็นว่าเทคนิคการควบคุมตามที่ออกแบบนี้สามารถเพิ่มคุณภาพของผลึกให้ดีขึ้นได้เมื่อทำการเปรียบเทียบกับวิธีการควบคุมแบบดั้งเดิมโดยการลดอุณหภูมิแบบเชิงเส้น นอกจากนี้สำหรับการตกผลึกโดยการลดอุณหภูมิ ปัจจัยที่ทำให้เกิดผลึกคือสภาวะอิ่มตัวยิ่งยวด (Supersaturation) ซึ่งมีความสัมพันธ์กับตัวแปรอุณหภูมิ และความเข้มข้นของสารละลาย เมื่อพิจารณารูปแบบการดำเนินงานแบบกึ่งเบตซ์ พบว่าการดำเนินงานรูปแบบนี้จะมีผลของตัวแปรทั้ง 2 ตัวนี้ ดังนั้นงานวิจัยนี้จึงทำการออกแบบการดำเนินงานแบบกึ่งเบตซ์ในการการเพิ่มคุณภาพของผลึกและใช้เทคนิคการออปติไมเซชัน (Optimization) เพื่อหารูปแบบสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมด้วย ผลจากการศึกษาพบว่าการทำงานแบบกึ่งเบตซ์นี้สามารถออกแบบให้ผลึกผลิตภัณฑ์มีขนาดใหญ่มากขึ้นมากกว่าการดำเนินงานแบบเบตซ์ได้

ทั้งนี้จากการดำเนินงานวิจัยในช่วงระยะเวลา 2 ปีที่ผ่านมา สามารถเขียนผลงานได้ 2 ฉบับ ซึ่งขณะนี้อยู่ระหว่างรอการแก้ไข (revised) และสามารถนำเสนอผลงานในที่ประชุมวิชาการนานาชาติได้ 1 เรื่อง

กิตติกรรมประกาศ

ขอขอบคุณสำนักงานคณะกรรมการการอุดมศึกษา และสำนักงานกองทุนสนับสนุนการวิจัย (สกอ. และสกว.) ที่ให้เงินทุนสนับสนุนงานวิจัยในครั้งนี้ (MRG5280109) และขอบคุณนักวิจัยที่ปรึกษา ผศ.ดร.อมรชัย อารณวิธานพ ที่ให้คำปรึกษาในการแก้ไขปัญหาและอุปสรรคต่างๆที่เกิดขึ้น งานวิจัยชิ้นนี้สำเร็จ มีผลงานส่งเพื่อตีพิมพ์เผยแพร่ในวารสารวิชาการนานาชาติ และยังสามารถนำผลงานเสนอในที่ประชุมวิชาการนานาชาติในปี 2553 ได้

สารบัญ

	หน้า
Abstract	i
บทคัดย่อ	ii
Executive Summary	iii
กิตติกรรมประกาศ	iv
สารบัญ	v
บทที่ 1 บทนำ	1
บทที่ 2 การทบทวนวรรณกรรมที่เกี่ยวข้อง	4
2.1 ผลงานวิจัยที่ผ่านมาเกี่ยวกับการหาสภาวะการดำเนินงานของ กระบวนการตกผลึกและการศึกษาออกแบบการควบคุมกระบวนการ	4
2.2 ผลงานวิจัยที่ผ่านมาเกี่ยวกับการออกแบบโครงข่ายประสาทเทียม และเทคนิคการควบคุมโดยใช้เทคนิคโครงข่ายประสาทเทียม	6
บทที่ 3 ทฤษฎีที่เกี่ยวข้อง	8
3.1 กระบวนการตกผลึก	8
3.2 กรณีศึกษา	14
3.3 การออฟติไมเซชัน	15
3.4 โครงข่ายประสาทเทียม	19
บทที่ 4 ผลการศึกษา	26
4.1 การศึกษาปรับปรุงประสิทธิภาพการควบคุมกระบวนการตกผลึกแบบเบตซ์ โดยใช้เทคนิคการออฟติไมเซชันร่วมกับโครงข่ายประสาทเทียม	26
4.2 การศึกษาการเพิ่มคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์โดยใช้วิธีการดำเนินงานแบบ กึ่งเบตซ์ และการหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมโดยใช้เทคนิคการออฟติไมเซชัน	41

	หน้า
บทที่ 5 สรุปผลการศึกษา	45
เอกสารอ้างอิง	46
ผลลัพธ์ที่ได้จากโครงการ	48
ภาคผนวก	
ภาคผนวก ก	49
ภาคผนวก ข	78
ภาคผนวก ค	100

สารบัญรูปภาพ

	หน้า
รูปที่ 3.1 กระบวนการตกผลึกแบบกะ	9
รูปที่ 3.2 แสดงกลไกการเกิดผลึก	11
รูปที่ 3.3 การอพติไมเซชันโดยวิธี sequential	19
รูปที่ 3.4 โครงข่ายการส่งข้อมูลแบบไม่ย้อนกลับ	20
รูปที่ 3.5 โครงข่ายการส่งข้อมูลแบบย้อนกลับ	21
รูปที่ 3.6 แบบจำลองโครงข่ายประสาทเทียมของ McCulloch-Pitts	22
รูปที่ 3.7 โครงข่ายประสาทเทียมที่ประกอบด้วยชั้นซ่อนเพียงชั้นเดียว	24
รูปที่ 3.8 โครงข่ายประสาทเทียมที่ประกอบด้วยชั้นซ่อนเพียงหลายชั้น	25
รูปที่ 4.1 แสดงวิธีการสอนให้โครงข่ายประสาทเทียมเรียนรู้พฤติกรรมของกระบวนการ	28
รูปที่ 4.2 ผลการทำนายค่าความเข้มข้นและโมเมนต์อันดับสามของโครงข่ายประสาทเทียม ที่มี 1 ชั้นซ่อน	30
รูปที่ 4.3 ผลการทำนายค่าความเข้มข้นและโมเมนต์อันดับสามของโครงข่ายประสาทเทียม ที่มี 2 ชั้นซ่อน	33
รูปที่ 4.4 ผลการทำนายค่าความเข้มข้นและโมเมนต์อันดับสามของโครงข่ายประสาทเทียม ที่มี 3 ชั้นซ่อน	36
รูปที่ 4.5 โครงสร้างของโครงข่ายประสาทเทียม 3 ชั้นซ่อนที่เลือกใช้ในงานวิจัยนี้	38
รูปที่ 4.6 โครงสร้างการควบคุมแบบออฟติมอล	39
รูปที่ 4.7 ผลการคำนวณหาสภาวะอุณหภูมิที่เหมาะสมในการดำเนินงาน	40
รูปที่ 4.8 แสดงผลการคำนวณหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมของการดำเนินงาน แบบกึ่งแบตช์ (รูป ก) และผลของความเข้มข้นสารละลาย (รูป ข) โดย C_s : จุด, C : เส้นทึบ, C_m : เส้นประ	42
รูปที่ 4.9 แสดงผลการคำนวณหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมของการดำเนินงาน แบบแบตช์ (รูป ก) และผลของความเข้มข้นสารละลาย (รูป ข) โดย C_s : จุด, C : เส้นทึบ, C_m : เส้นประ	43

สารบัญตาราง

	หน้า
ตารางที่ 3.1 ตัวแปรสำหรับกระบวนการตกผลึกของสารละลายโพแทสเซียมซัลเฟต	15
ตารางที่ 4.1 ค่าความแตกต่างเฉลี่ยยกกำลังสอง (mean square error) จาก โครงข่ายประสาทเทียมที่มี 1 ชั้นซ่อน	31
ตารางที่ 4.2 ค่าความแตกต่างเฉลี่ยยกกำลังสอง (mean square error) จาก โครงข่ายประสาทเทียมที่มี 2 ชั้นซ่อน	34
ตารางที่ 4.3 ค่าความแตกต่างเฉลี่ยยกกำลังสอง (mean square error) จาก โครงข่ายประสาทเทียมที่มี 3 ชั้นซ่อน	37
ตารางที่ 4.4 รายละเอียดโครงสร้างที่เหมาะสมของโครงข่ายประสาทเทียม 3 ชั้นซ่อนที่ใช้ในงานวิจัยนี้	38
ตารางที่ 4.5 คุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ที่เกิดขึ้น	40
ตารางที่ 4.6 ผลเปรียบเทียบคุณภาพของผลึกที่เกิดขึ้นที่ปริมาณสารละลาย 27 กิโลกรัม	44
ตารางที่ 4.7 ผลเปรียบเทียบคุณภาพของผลึกที่เกิดขึ้นที่สภาวะการดำเนินงานต่างๆ	44

บทที่ 1

บทนำ (Introduction)

กระบวนการตกผลึก (crystallization process) เป็นกระบวนการแยกสารหรือทำให้สารบริสุทธิ์ที่สำคัญกระบวนการหนึ่งซึ่งนิยมใช้มากในทางอุตสาหกรรม เช่น ในอุตสาหกรรมเคมี กระบวนการนี้จะนิยมใช้ในการผลิตตัวเร่งปฏิกิริยา (catalyst) ในอุตสาหกรรมปิโตรเคมี เพื่อผลิตพอลิเมอร์ (emulsion polymerization) นอกจากนี้ยังพบในอุตสาหกรรมการผลิตยาโดยใช้เพื่อแยกส่วนประกอบของโปรตีน อุตสาหกรรมอาหารในกระบวนการผลิตน้ำตาล อุตสาหกรรมไมโครอิเล็กทรอนิกส์ในส่วนการผลิตซิลิคอน และอุตสาหกรรมเกษตร เช่น การผลิตสารเคมีที่เป็นส่วนประกอบของปุ๋ยเคมี เป็นต้น กระบวนการแยกสารโดยการตกผลึกนั้นเป็นที่นิยมมาก เนื่องจากกระบวนการนี้ให้ผลิตภัณฑ์ที่มีความบริสุทธิ์สูง และขั้นตอนการแยกสารสามารถทำได้โดยใช้เพียงขั้นตอนเดียว นอกจากนี้ค่าใช้จ่ายในการดำเนินงานไม่สูงมากนัก

กระบวนการตกผลึกจะเกิดปรากฏการณ์ทางเคมีฟิสิกส์ (physicochemical phenomena) ได้แก่ กระบวนการเกิดผลึก (nucleation) การโตของผลึก (growth) การรวมตัวของผลึก (coagulation) และการแตกตัวของผลึก (breakage) โดยปรากฏการณ์เหล่านี้จะทำให้ผลึกที่ได้มีคุณสมบัติที่ต่างกัน ได้แก่ ขนาดและโครงสร้างของผลึก การหาสภาวะที่เหมาะสม การควบคุมกระบวนการตกผลึก รวมทั้งการปรับปรุงกระบวนการตกผลึก เพื่อผลิตผลิตภัณฑ์ที่อยู่ในรูปของผลึกให้มีขนาดและรูปร่างตามที่ต้องการเป็นเรื่องที่สำคัญและน่าสนใจอย่างมาก ผลึกที่ไม่ได้มาตรฐานจะมีผลอย่างมากต่อคุณสมบัติของผลิตภัณฑ์และการดำเนินงานของกระบวนการที่ต่อเนื่อง ยกตัวอย่างเช่น ในอุตสาหกรรมการผลิตยาซึ่งมีการใช้กระบวนการตกผลึกเป็นกระบวนการหลักในการผลิตตัวยาก่อนนำไปขึ้นรูปเป็นยาในรูปแบบต่างๆ พบว่าการกระจายขนาดของผลึกของสารเคมีที่เป็นองค์ประกอบของตัวยามีผลอย่างมากต่อการขึ้นรูปเม็ดยา อัตราการปลดปล่อยตัวยาและความบริสุทธิ์ของยา ทั้งนี้หากผลึกยาที่ได้มีการกระจายขนาดที่กว้างจะส่งผลให้อัตราการปลดปล่อยตัวยาไม่คงที่ อีกทั้งถ้าผลึกยาที่ได้มีขนาดเล็กเกินไป จะทำให้มีการปนเปื้อนของสารได้มากกว่าผลึกที่มีขนาดใหญ่ ในส่วนของอุตสาหกรรมปุ๋ยเคมี การกระจายขนาดของผลึกของสารเคมีที่ใช้ผลิตปุ๋ยเคมี เช่น โพแทสเซียมไนเตรต จะมีผลต่อการขึ้นรูปเม็ดปุ๋ยและอัตราการปลดปล่อยธาตุอาหารสู่ดิน ดังนั้นจะเห็นได้ว่าการควบคุมค่าการกระจายตัวของขนาดผลึกที่มีประสิทธิภาพจึงเป็นปัจจัยที่สำคัญสำหรับการควบคุมคุณภาพของผลิตภัณฑ์ นอกจากนี้ยังพบว่าขนาดของผลิตภัณฑ์ผลึกที่ไม่ได้มาตรฐานจะส่งผลกระทบต่อกระบวนการกรองและการอบแห้ง หรืออาจจำเป็นต้องมีกระบวนการอื่นเพิ่มเติม ได้แก่ การนำกลับมาตกผลึกใหม่ (recrystallization) หรือ การบด (milling) ซึ่งส่งผลต่อค่าใช้จ่ายในการดำเนินงาน ด้วย

เหตุผลดังที่กล่าวนี้ทำให้การหารูปแบบการดำเนินงานและสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมเพื่อให้ได้คุณภาพของผลึกตามข้อกำหนดนั้นเป็นสิ่งที่สำคัญมากสำหรับกระบวนการตกผลึก

การศึกษาหาสภาวะที่เหมาะสมของการตกผลึกในงานวิจัยนี้จะใช้สมการแบบจำลองทางคณิตศาสตร์ (mathematical model) เนื่องจากการศึกษาโดยใช้แบบจำลองทางคณิตศาสตร์นั้นเป็นวิธีการหนึ่งที่มีประสิทธิภาพอย่างมากที่นำมาช่วยสำหรับการทำการศึกษา และวิเคราะห์หาผลลัพธ์ เพื่อนำไปใช้ในการแก้ปัญหาในด้านต่างๆ ที่มีระบบหรือขั้นตอนการทำงานที่มีความยุ่งยากซับซ้อน โดยเฉพาะอย่างยิ่งในสภาพของธุรกิจโลกปัจจุบันที่มีการแข่งขันกันอย่างรุนแรงในทุกๆ ด้าน การจำลองแบบปัญหาจึงกลายเป็นวิธีการอย่างหนึ่งที่มีความสำคัญ และมีความเหมาะสมที่สุดที่จะนำมาใช้งาน เพื่อช่วยในด้านการวิเคราะห์ การออกแบบ การวางแผน การควบคุมงาน และอื่นๆ อีกมากมาย สำหรับระบบงานต่างๆ การสร้างแบบจำลองจะเป็นประโยชน์ต่อการตัดสินใจของผู้บริหารระดับสูง และสามารถช่วยให้เข้าใจในระบบงานจริง เพื่อประโยชน์ในการอธิบายพฤติกรรม และเพื่อปรับปรุงการทำงานของระบบงานจริง นอกจากนี้ยังมีงานวิจัยจำนวนหนึ่งได้ทำการศึกษาออกแบบสมการทางคณิตศาสตร์เพื่อให้สามารถอธิบายพฤติกรรมต่างๆ ของกระบวนการตกผลึกได้อย่างเหมาะสม

เนื่องจากปัญหาที่พบในกระบวนการตกผลึกส่วนใหญ่ คือ ผลึกที่เกิดขึ้นมีขนาดไม่ได้ตามมาตรฐานที่ต้องการ ดังนั้นในงานวิจัยนี้เราจึงให้ความสนใจศึกษาการควบคุมขนาดผลึก เนื่องจากขนาดผลึกมีความสำคัญต่อคุณสมบัติของสาร เช่น อัตราการละลาย คุณสมบัติการไหล คุณภาพของผลิตภัณฑ์ เป็นต้น นอกจากนี้ในกระบวนการการผลิตยา จำเป็นต้องควบคุมขนาดของผลึกให้มีขนาดเท่าๆ กัน เพื่อประสิทธิภาพสูงสุดของตัวยานั้นๆ หรือในกระบวนการผลิตน้ำตาลทรายก็ต้องการผลึกที่มีขนาดเท่ากันเพื่อเพิ่มมูลค่าของผลิตภัณฑ์ แต่การจะทำให้ผลึกมีขนาดเท่ากันทุกผลึกในขั้นตอนการผลิตนั้นเป็นเรื่องที่เป็นไปได้ยาก ดังนั้นจึงนิยมที่จะดำเนินการผลิตให้ได้ผลึกที่มีขนาดที่ใหญ่ก่อน เนื่องจากผลึกที่มีขนาดใหญ่นั้นจะง่ายต่อการควบคุมคุณภาพผลึก แล้วจึงทำการลดขนาดของผลึกลง เช่น การนำมาบด ซึ่งจะทำให้กำหนดขนาดของผลึกที่ต้องการได้ง่ายขึ้น ดังนั้นจึงต้องศึกษาสภาวะที่เหมาะสมของการตกผลึกที่ทำให้เกิดผลึกที่มีขนาดใหญ่ที่สุด

วัตถุประสงค์ของงานวิจัยนี้จึงทำการศึกษาการเพิ่มประสิทธิภาพของกระบวนการตกผลึกแบบลดอุณหภูมิ (cooling crystallization) โดยวิธีการจำลองกระบวนการ (simulation) บนโปรแกรมแมทแล็บ (MATLAB) โดยเลือกกระบวนการละลายโพแทสเซียมซัลเฟตจากงานวิจัยของ Shi และคณะ (2006) เป็นกรณีศึกษา โดยการศึกษาวิจัยนี้ได้แบ่งงานเป็น 2 ส่วน ส่วนที่หนึ่ง ทำการศึกษาปรับปรุงประสิทธิภาพการควบคุมกระบวนการตกผลึกแบบเบดซ์ โดยใช้เทคนิคการอพติไมเซชันร่วมกับโครงข่ายประสาทเทียม (artificial neural network) และส่วนที่สอง ทำการการศึกษาหาแนวทางเพิ่มคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ โดย

ใช้วิธีการดำเนินงานแบบกึ่งแบดซ์ และศึกษาหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมโดยใช้เทคนิคการอพติไมเซชัน โดยเนื้อหาในรายงานฉบับนี้จะแบ่งเป็นหัวข้อเกี่ยวกับการทบทวนวรรณกรรมที่เกี่ยวข้อง ซึ่งจะอยู่ในบทที่ 2 ทฤษฎีต่างๆ ที่เกี่ยวกับกับการศึกษาวิจัยจะนำเสนอในบทที่ 3 ผลการศึกษาวิจัยในบทที่ 4 และบทที่ 5 จะเป็นส่วนการสรุปผลของงานวิจัย

บทที่ 2

การทบทวนวรรณกรรมที่เกี่ยวข้อง (Literature Reviews)

งานวิจัยนี้ทำการศึกษาปรับปรุงประสิทธิภาพการควบคุม และการเพิ่มคุณภาพของผลิตภัณฑ์ในกระบวนการตกผลึก ซึ่งที่ผ่านมาที่มีงานวิจัยจำนวนหนึ่งได้ทำการศึกษาพัฒนากระบวนการตกผลึกในประเด็นต่างๆ ดังนี้

2.1 ผลงานวิจัยที่ผ่านมาเกี่ยวกับการหาสภาวะการดำเนินงานของกระบวนการตกผลึกและการศึกษาออกแบบการควบคุมกระบวนการ มีดังนี้

Miller และ Rawling (1994) เสนอวิธีการสร้างแบบจำลองกระบวนการตกผลึกและวิธีการหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมของระบบ $\text{KNO}_3\text{-H}_2\text{O}$ โดยค่าตัวแปรทางจลนพลศาสตร์สามารถคำนวณได้จากการวัดค่าความเข้มข้นของตัวถูกละลายและค่าแสงที่ส่องผ่านสารละลายจากเครื่องทรานสมิทเทน จากการศึกษาพบว่าการใช้เทคนิคออฟติไมเซชันเพื่อหาอุณหภูมิที่เหมาะสมในการดำเนินงานทำให้ผลิตภัณฑ์ที่ได้มีคุณภาพดีขึ้น โดยมีขนาดผลึกเฉลี่ยโตขึ้น 48% เมื่อเทียบกับการดำเนินงานแบบเดิมโดยการลดอุณหภูมิตามธรรมชาติ (natural cooling)

Lang และคณะ (1999) ทำการออกแบบวิธีทางไดนามิกส์ออฟติไมเซชันเพื่อประยุกต์ใช้ในทางอุตสาหกรรมของกระบวนการตกผลึก โดยมีวัตถุประสงค์ให้ผลึกมีขนาดใหญ่เพื่อที่จะได้ผลิตภัณฑ์ที่บริสุทธิ์สูง ผลการดำเนินงานพบว่าการทำงานแบบนี้สามารถเพิ่มประสิทธิภาพของการดำเนินงานโดยผลึกมีขนาดโตขึ้น 50% เมื่อเปรียบเทียบกับการทำงานแบบเดิม

Zang และ Rohani (2003) ศึกษาพัฒนาการควบคุมแบบออนไลน์ออฟติมอล (on-line optimal control) โดยใช้เครื่องควบคุมแบบพีไอ (PI controller) และทดสอบผลการควบคุมโดยใช้การจำลองกระบวนการและใช้กระบวนการตกผลึกเป็นกรณีศึกษา ผลการศึกษพบว่ารูปแบบการควบคุมที่ออกแบบนี้ช่วยเพิ่มคุณภาพของผลิตภัณฑ์ในทอมของขนาดผลึกเฉลี่ยและค่าการกระจายขนาดผลึกได้

Choong และ Smith (2004) เสนอเทคนิคการหารูปแบบการดำเนินงานที่เหมาะสมที่ให้ผลิตภัณฑ์ที่มีคุณภาพสูง ซึ่งนำไปประยุกต์ใช้กับกระบวนการตกผลึกแบบระเหย (evaporative crystallization) ในสารผสมของกรดซิตริกและน้ำ โดยศึกษารูปแบบการดำเนินงานแบบแบตช์ และกึ่งแบตช์

จากการศึกษาพบว่ารูปแบบการดำเนินงานที่เสนอนั้นให้ผลิตภัณฑ์มีคุณภาพสูงขึ้นเมื่อเทียบกับรูปแบบการดำเนินงานแบบเดิม เนื่องจากค่าที่เหมาะสมกว้าง (global optima) แต่จะต้องใช้เวลาในการคำนวณเพื่อหาสภาวะการดำเนินงานนั้นนาน นอกจากนี้ยังพบว่าการทำงานแบบกึ่งแบดช์นั้นให้ผลิตภัณฑ์ที่มีขนาดผลึกเฉลี่ยที่โตและค่าการกระจายตัวของผลึกดีกว่าการทำงานแบบแบดช์

Costa และคณะ (2005) เสนอการลดอุณหภูมิแบบออฟติมอลในกระบวนการตกผลึกของสารละลายกรดอะซิติก เพื่อเพิ่มคุณภาพผลิตภัณฑ์ โดยพิจารณาจากค่าขนาดผลึกเฉลี่ยและค่าสัมประสิทธิ์การกระจายตัว (variation coefficient) วิธีออฟติไมเซชันจะคำนวณโดยใช้ sequential quadratic programming (SQP) ผลการศึกษาพบว่าคุณภาพของผลิตภัณฑ์จะสูงขึ้น

Costa และ Filho (2005) ศึกษาการใช้เทคนิคออฟติไมเซชันแบบ deterministic (successive quadratic programming, SQP) และ stochastic (genetic algorithm, GA) พบว่าการใช้วิธี SQP นั้นคำตอบที่ได้จะขึ้นกับค่าเริ่มต้นที่ใช้ประมาณ สำหรับวิธี GA สามารถหาคำตอบที่ทำให้ค่าการเบี่ยงเบนของการกระจายขนาดผลึก (standard deviation of the final crystal size distribution) น้อยที่สุด แต่อย่างไรก็ตามวิธี GA จะใช้เวลาในการคำนวณนาน ทำให้วิธีนี้ไม่เหมาะสมที่จะนำไปประยุกต์ใช้จริง

Hojjati และ Rohani (2005) ศึกษาผลของการลดอุณหภูมิในกระบวนการตกผลึกแบบลดอุณหภูมิ (cooling crystallization) 4 แบบ คือ การลดอุณหภูมิตามธรรมชาติ (natural cooling policy) ลดลงแบบเชิงเส้น (linear cooling policy) การควบคุมการลดอุณหภูมิ (controlled cooling policy) และการเปลี่ยนอุณหภูมิขณะทีลดลงตามธรรมชาติ (impulse change in natural cooling policy) จากผลการทดลองพบว่า การลดอุณหภูมิแบบมีการควบคุมสามารถให้ผลิตภัณฑ์ที่มีค่าการกระจายตัวแคบ และผลึกที่ได้มีขนาดใหญ่กว่าการใช้วิธีอื่น

Hu และคณะ (2005) ศึกษาวิธีการออฟติไมเซชันเพื่อหาอุณหภูมิดำเนินการที่ทำให้ค่าโมเมนตัมที่สามของการเกิดผลึกต่อโมเมนตัมที่สามของการโตของผลึกมีค่าน้อยที่สุด โดยใช้เทคนิค sequential quadratic programming (SQP) ผลการศึกษาพบว่าวิธีนี้สามารถเพิ่มคุณภาพของผลิตภัณฑ์ โดยการลดปริมาตรของผลึกขนาดเล็ก (fines) ซึ่งไม่เป็นที่ต้องการได้ถึง 53.2%

Goncalves และคณะ (2005) ทำการศึกษาและเปรียบเทียบสมรรถนะของกระบวนการตกผลึกแบบมีปฏิกิริยาในการสังเคราะห์เอนไซม์ (amoxicillin enzyme) โดยการจำลองกระบวนการในเครื่องปฏิกรณ์แบบแบดช์และกึ่งแบดช์ ผลจากการศึกษาพบว่าเครื่องปฏิกรณ์แบบกึ่งแบดช์นั้นมีสมรรถนะที่ดีกว่าแบบแบดช์เนื่องจากสามารถผลิตเอนไซม์ได้มากกว่า นอกจากนี้การดำเนินงานแบบกึ่งแบดช์ยังเป็นการทำให้การเกิดปฏิกิริยาและการตกผลึกเกิดขึ้นได้ในเครื่องปฏิกรณ์เดียวกัน

นอกจากนี้ จากการศึกษาที่ผ่านมายังพบว่าเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมนั้น สามารถนำมาประยุกต์ใช้ในการออกแบบการควบคุมกระบวนการต่างๆได้ รายละเอียดเนื้อหาโดยสรุปของงานวิจัยเหล่านั้น มีดังนี้

2.2 ผลงานวิจัยที่ผ่านมาเกี่ยวกับการออกแบบโครงข่ายประสาทเทียม และเทคนิคการควบคุมโดยใช้เทคนิคโครงข่ายประสาทเทียม

Mjalli และคณะ (2007) นำเสนอการประยุกต์ใช้โครงข่ายประสาทเทียมในการออกแบบทำนายพฤติกรรมของกระบวนการบำบัดน้ำเสีย ผลการศึกษาแสดงให้เห็นว่าตัวแปรที่ทำการทำงานโดยการออกแบบโครงข่ายแบบ multi-input network นั้นสามารถใช้อธิบายพฤติกรรมของกระบวนการได้เป็นอย่างดี ซึ่งสามารถกล่าวได้ว่าโครงข่ายประสาทเทียมนี้เป็นเทคนิคที่สามารถใช้ในการศึกษากระบวนการที่ซับซ้อนได้เป็นอย่างดี

Nagy (2007) ศึกษาการออกแบบโครงข่ายประสาทเทียมและการควบคุมกระบวนการทางชีวเคมี ผลการศึกษาพบว่าเมื่อนำเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมมาออกแบบการควบคุมแบบโมเดลพรีดิกทีฟ ทำให้สามารถควบคุมกระบวนการแบบ real-time ได้ นอกจากนี้การนำโครงข่ายประสาทเทียมมาใช้อังยังทำให้สามารถใช้แบบจำลองทางคณิตศาสตร์อย่างง่ายในการออกแบบระบบการควบคุมได้อีกด้วย

Zhang (2005) ศึกษาออกแบบการควบคุมแบบออฟติมอลของเครื่องปฏิกรณ์แบบแบตช์ในกระบวนการผลิตโพลีเมอร์ โดยทำการศึกษาออกแบบโครงข่ายประสาทเทียมเพื่อใช้ในการควบคุมการดำเนินงานของเครื่องปฏิกรณ์ ซึ่งการควบคุมที่ออกแบบนี้สามารถควบคุมกระบวนการได้อย่างดีแม้จะเกิดปัญหาขึ้นกับกระบวนการ นั่นคือสามารถจัดการกับผลของตัวแปรรบกวนต่างๆที่เข้ามาในกระบวนการ และปัญหาในกรณีที่มีความผิดพลาดของตัวแปรที่ใช้ในแบบจำลองทางคณิตศาสตร์ในการคำนวณหาสภาวะการควบคุมแบบออฟติมอลได้

Akesson และ Toivonen (2006) นำเสนอการควบคุมแบบออฟติมอลร่วมกับเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมในการออกแบบการควบคุมกระบวนการที่มีแบบจำลองทางคณิตศาสตร์ที่ไม่เป็นเชิงเส้นและมีเงื่อนไขข้อจำกัดในการดำเนินงาน และทำการศึกษาเปรียบเทียบกับเทคนิคการควบคุมขั้นสูงคือการควบคุมแบบโมเดลพรีดิกทีฟ ผลจากการศึกษาพบว่า การควบคุมแบบออฟติมอลร่วมกับเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมนี้สามารถใช้ในการควบคุมกระบวนการได้ดีเทียบเท่าได้กับการใช้เทคนิคการควบคุมขั้นสูง

Georgieva และ Azevedo (2006) นำเสนอการประยุกต์ใช้โครงข่ายประสาทเทียมในการออกแบบการควบคุมกระบวนการตกผลึกแบบกึ่งแบดซ์ของผลิตภัณฑ์น้ำตาล จากผลการศึกษาสามารถกล่าวได้ว่าเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมสามารถใช้เรียนรู้และอธิบายพฤติกรรมของกระบวนการที่ไม่เป็นเชิงเส้นได้เป็นอย่างดี

บทที่ 3

ทฤษฎีที่เกี่ยวข้อง (Theory)

3.1 กระบวนการตกผลึก (Crystallization)

กระบวนการตกผลึกเป็นกระบวนการแยกสารโดยผลิตภัณฑ์จะอยู่ในรูปของแข็งภายในสารละลายเนื้อเดียว (homogeneous phase) ลักษณะการเกิดผลึกจะเกิด 2 ขั้นตอน คือ การเกิดของผลึกใหม่ซึ่งมีขนาดเล็ก (nucleation) และการโตของผลึก (growth) โดยมีสภาวะที่ไม่สมดุลของระบบเป็นตัวแปรที่ทำให้เกิดผลึก และสภาวะนี้นิยามวัดจากค่าการอิ่มตัวยิ่งยวด (S) ซึ่งคำนวณได้จากสมการ

$$S = \frac{C - C_s(T)}{C_s(T)} \quad (3.1)$$

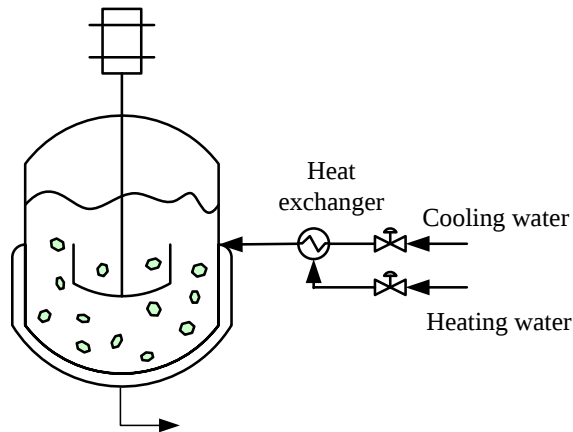
โดย C คือค่ามวลของตัวถูกละลายต่อมวลของตัวทำละลาย และ C_s คือค่าความเข้มข้นที่สภาวะอิ่มตัวซึ่งขึ้นกับอุณหภูมิ (T) ของระบบ

วิธีในการทำให้เกิดสภาวะที่ไม่สมดุลของระบบนี้สามารถทำได้หลายวิธีขึ้นกับคุณสมบัติของสารที่จะแยก โดย

1. ถ้าสารที่ต้องการแยกนั้น มีค่าความสามารถในการละลายขึ้นกับอุณหภูมิ จะใช้วิธีการลดอุณหภูมิในการทำให้เกิดผลึก (cooling) รูปของกระบวนการแสดงได้ดังรูปที่ 3.1
2. ถ้าความสามารถในการละลายของสารที่จะแยกไม่ขึ้นกับอุณหภูมิ จะใช้วิธีการระเหยตัวทำละลายออก (evaporating)
3. ถ้าความสามารถในการละลายของสารที่จะแยกมีค่าสูง ทำให้ทั้งวิธีการลดอุณหภูมิและการระเหยตัวทำละลายออกไม่สามารถทำให้เกิดผลึกได้ จะใช้การเติมสารละลายชนิดที่สามลงไปเพื่อทำให้ความสามารถในการละลายของสารที่ต้องการแยกลดลง เรียกว่าวิธีการทำให้เกิดเกลือ (salting)

กระบวนการตกผลึกนี้เป็นกระบวนการที่สารละลายไม่เป็นเนื้อเดียวกัน (heterogeneous system) ซึ่งการอธิบายโดยใช้สมการทางคณิตศาสตร์ (mathematical model) นั้นทำได้ได้ยาก เนื่องจากไม่เพียงแต่ความเข้มข้นของสารละลายและอุณหภูมิที่ส่งผลต่ออัตราการเกิดและการโตของผลึก แต่คุณลักษณะต่างๆ ของผลึก เช่น ความไม่สมบูรณ์ของผลึก ก็ยังส่งผลต่ออัตราการโตของผลึกด้วย ดังนั้นในการสร้างแบบจำลองกระบวนการโดยใช้สมการทางคณิตศาสตร์เพื่ออธิบายกระบวนการตกผลึกนี้ จึงมีข้อกำหนดให้

1. กระบวนการเกิดการผสมกันอย่างสมบูรณ์ (well-mixed)
2. ปริมาตรของสารภายในเครื่องปฏิกรณ์คงที่
3. ไม่คำนึงถึงผลของการรวมตัว (agglomeration) และการแตกตัว (breakage) ของผลึก



รูปที่ 3.1 กระบวนการตกผลึกแบบแบตช์

สมการทางคณิตศาสตร์ที่เหมาะสมในการอธิบายกระบวนการตกผลึกคือ สมการอนุรักษ์จำนวนอนุภาคในกลุ่มประชากร (population balance) สำหรับการดำเนินงานแบบแบตช์นั้น สามารถแสดงได้ดังสมการดังนี้

$$\frac{\partial f(L,t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial f(L,t)}{\partial L} = 0 \quad (3.2)$$

โดย f คือจำนวนประชากรอนุภาค และ L คือขนาดผลึก และมีสมการเงื่อนไข ดังนี้

$$f(0,t) = \frac{B(t)}{G(t)} \quad (3.3)$$

โดยมีสมการอนุรักษ์มวลของตัวถูกละลาย ดังนี้

$$\frac{dC}{dt} = -3\rho_c k_v h G \int_0^\infty f(L,t) L^2 dL \quad (3.4)$$

และสมการอนุรักษ์พลังงานของเครื่องปฏิกรณ์และน้ำหล่อเย็น ดังนี้

$$\rho V c_p \frac{dT}{dt} = -3\Delta H_c \rho_c k_v V \int_0^\infty G f L^2 dL - UA(T - T_j) \quad (3.5)$$

$$\frac{dT_j}{dt} = \frac{F_j}{V_j} (T_{jsp} - T_j) + \frac{UA}{\rho_j V_j C_{p_j}} (T - T_j) \quad (3.6)$$

โดยตัวแปร C คือค่ามวลของตัวถูกละลายต่อมวลของตัวทำละลาย ρ_c คือค่าความหนาแน่นของผลึก k_v คือค่าแฟกเตอร์รูปร่างเชิงปริมาตร (volume shape factor) c_p คือค่าความจุความร้อนจำเพาะของสารละลาย ΔH_c คือค่าความร้อนของการตกผลึก U คือค่าคงที่การถ่ายเทความร้อนรวม A คือค่าพื้นที่ผิวในการถ่ายเทความร้อน และ T_j คือค่าอุณหภูมิของน้ำหล่อเย็น

สำหรับการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์นั้น สมการทางคณิตศาสตร์ที่ใช้อธิบายพฤติกรรมทางพลวัตของการอนุรักษ์จำนวนอนุภาคในกลุ่มประชากร และการอนุรักษ์มวลของตัวถูกละลาย จะแตกต่างจากการดำเนินงานแบบแบตช์ ดังแสดงในสมการด้านล่างนี้

$$\frac{\partial f(L,t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial f(L,t)}{\partial L} + f \frac{d(\ln M)}{dt} = 0 \quad (3.7)$$

สมการอนุรักษ์มวลของตัวถูกละลาย

$$\frac{dC}{dt} = -3\rho_c k_v G(t) \int_0^\infty L^2 f(L,t) dL - C(t) \frac{d(\ln M)}{dt} + \frac{F_s(t)}{M(t)} \quad (3.8)$$

โดยสมการอนุรักษ์มวลของตัวถูกละลายในเครื่องปฏิกรณ์ (M) แสดงดังสมการ

$$\frac{dM}{dt} = F(t) \quad (3.9)$$

การเกิดผลึก (Crystal nucleation, B)

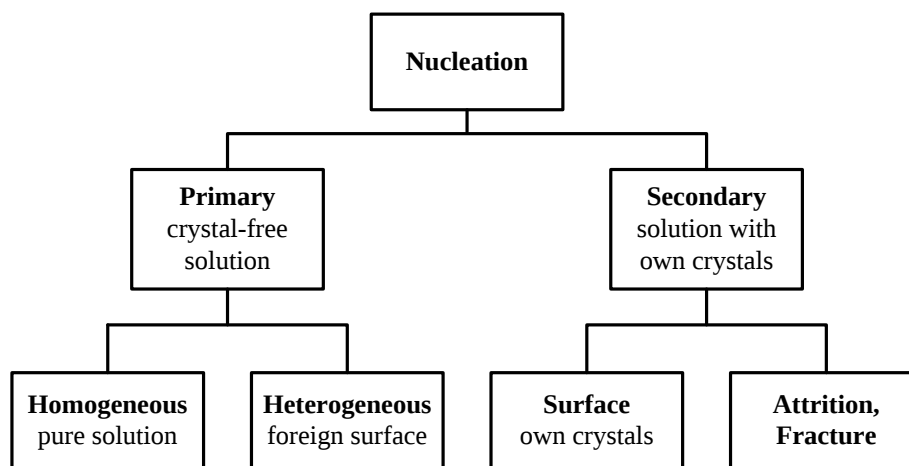
การเกิดผลึกสามารถเกิดหลายวิธี โดยวิธีการเกิดแบบปฐมภูมิ (primary nucleation) จะเป็นการเกิดผลึกจากสารละลายซึ่งไม่มีการเติมผลึกเข้าไป ซึ่งเรียกว่า homogeneous nucleation หรืออาจเกิดจากการเติมอนุภาคอื่น เช่น ผงฝุ่น หรือสารอื่นๆ เข้าไป วิธีนี้เรียกว่า heterogeneous nucleation สำหรับการเกิดผลึกโดยวิธีทุติยภูมิ (secondary nucleation) จะมีการเติมผลึกเข้าไปในขั้นเริ่มต้น รูปที่ 3.2 แสดงวิธีการเกิดผลึกในแบบต่างๆ จากทฤษฎีทางอุณหพลศาสตร์ (thermodynamics) พบว่าวิธีการเกิดผลึกแบบปฐมภูมิ จะเกิดได้ในสภาวะที่ระดับค่าการอิ่มตัวยิ่งยวดสูง ซึ่งที่ระดับนี้อาจเป็นช่วงที่ไม่เหมาะสมในการดำเนินงาน นอกจากนี้แล้วผลึกที่เกิดขึ้นมีคุณภาพไม่ดีและการควบคุมกระทำได้ยาก ทำให้วิธีนี้ไม่เป็นที่ยอมรับ

ใช้ แต่สำหรับวิธีการเกิดผลึกแบบทุติยภูมิ จะเกิดได้ในสภาวะที่ค่าการอึดตัวยิ่งยวดต่ำ ทำให้ได้ผลึกที่มีคุณภาพดี และควบคุมได้ง่าย ทำให้วิธีนี้เป็นที่นิยมใช้ทั้งในระดับปฏิบัติการและในระดับอุตสาหกรรม

สมการทางจลนพลศาสตร์ที่อธิบายการเกิดผลึกนิยมแสดงในรูปสมการยกกำลัง ดังนี้

$$B = k_b \exp(-E_b / RT) S^b \mu_3^k \quad (3.10)$$

โดย E_b คือค่าพลังงานในการเกิดผลึก (nucleation activation energy) b คือค่ายกกำลัง S คือค่าสภาวะอึดตัวยิ่งยวด และ μ_3 คือค่าโมเมนต์อันดับที่สามของการกระจายขนาดผลึก (third moment of the CSD)



รูปที่ 2 กลไกการเกิดผลึก

การโตของผลึก (Crystal growth, G)

โมเลกุลของตัวถูกละลายจะเคลื่อนที่จากสารละลายและดูดซับเข้าไปยังพื้นผิวของผลึก ทำให้เกิดการโตของผลึก โดยสมการทางจลนพลศาสตร์ที่อธิบายการโตของผลึกนิยมแสดงสมการที่กำหนดให้อัตราการโตไม่ขึ้นกับขนาดผลึก ดังสมการ

$$G = k_g \exp(-E_g / RT) S^g \quad (3.11)$$

โดย E_g คือค่าพลังงานในการโตของผลึก (growth activation energy) g คือค่ายกกำลัง

จากสมการที่ใช้อธิบายพฤติกรรมของกระบวนการตกผลึก จะพบว่าสมการอนุพันธ์มวลและสมการอนุพันธ์พลังงานของเครื่องปฏิกรณ์ (สมการ 3.4 และ 3.5) เป็นสมการอนุพันธ์ที่ไม่เป็นเชิงเส้น (nonlinear integro-differential) โดยการถ่ายเทมวลของตัวถูกละลายไปยังสถานะของแข็ง แสดงในเทอมอินทิเกรตของอัตราการโตของแต่ละผลึก สำหรับกระบวนการตกผลึกนี้นิยมใช้วิธีโมเมนต์ (method of moment) เพื่อเปลี่ยนรูปสมการให้ง่าย โดยการนิยามค่าโมเมนต์ หรือ μ ดังสมการ

$$\mu_i = \int_0^\infty L^i f dL \quad (3.12)$$

จากสมการอนุพันธ์ประชากรโดยอัตราการโตไม่ขึ้นกับขนาดผลึก

$$\frac{\partial f}{\partial t} = -G \frac{\partial f}{\partial L} + B\delta(L - L_0) \quad (3.13)$$

สมการแสดงอัตราการเปลี่ยนแปลงค่าโมเมนต์สามารถทำได้โดยคูณสมการ (3.10) ด้วย L^i และทำการอินทิเกรตตลอดช่วงขนาดของผลึก

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_0^\infty f L^i dL = -G \int_0^\infty \frac{\partial f}{\partial L} L^i dL + \int_0^\infty B\delta(L - L_0) L^i dL \quad (3.14)$$

ใช้วิธีอินทิเกรต by parts เพื่อเปลี่ยนรูปของเทอมแรกในสมการทางขวา

$$-G \int_0^\infty \frac{\partial f}{\partial L} L^i dL = -GL^i f \Big|_0^\infty + iG \int_0^\infty f L^{i-1} dL \quad (3.15)$$

ถ้า f มีค่าที่ $L = 0$ และไม่มีผลึกที่ขนาดใหญ่มาๆ ดังนั้นเทอมแรกของสมการทางขวาสามารถละได้ และเมื่อแทนค่ากลับเข้าไปในสมการที่ (3.11) โดยให้ $L_0 \rightarrow 0$ จะได้

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_0^\infty f L^i dL = iG \int_0^\infty f L^{i-1} dL + B0^i \quad (3.16)$$

หรือแสดงในเทอมของโมเมนต์

$$\begin{aligned} \frac{d\mu_0}{dt} &= B & i &= 0 \\ \frac{d\mu_i}{dt} &= iG\mu_{i-1} & i &= 1, 2, 3 \end{aligned} \quad (3.17)$$

ดังนั้น จากสมการอนุพันธ์ประชากรที่แสดงแบบสมการเชิงอนุพันธ์ย่อย (partial differential) สามารถเปลี่ยนให้อยู่ในเทอมของโมเมนต์ซึ่งเป็นสมการเชิงอนุพันธ์ (ordinary differential)

สมการโมเมนต์สามารถแยกพิจารณาในเทอมของการเกิดและการโตของผลึกได้ เนื่องจากกำหนดให้ผลึกที่เกิดขึ้นไม่มีการรวมตัวและแตกตัวออก ทำให้สมการโมเมนต์อันดับศูนย์ของการโต (ซึ่งนิยามจำนวนผลึกทั้งหมดที่เกิดขึ้น) มีค่าคงที่เท่ากับค่าที่สภาวะเริ่มต้น ดังสมการดังนี้

$$\begin{aligned}\frac{d\mu_0^n}{dt} &= B(t), \\ \frac{d\mu_i^n}{dt} &= iG(t)\mu_{i-1}^n(t), \quad i = 1, 2, 3\end{aligned}\tag{3.18}$$

$$\begin{aligned}\mu_0^s &= \text{constant}, \\ \frac{d\mu_i^s}{dt} &= iG(t)\mu_{i-1}^s(t), \quad i = 1, 2, 3\end{aligned}\tag{3.19}$$

โดยค่าโมเมนต์รวมเท่ากับ $\mu_i = \mu_i^n + \mu_i^s$

ข้อจำกัดในการใช้สมการโมเมนต์ คือ ในกรณีที่พิจารณาการโตของผลึกในรูปแบบสมการที่ขึ้นกับขนาดผลึกนั้นจะไม่สามารถใช้สมการโมเมนต์ในการอธิบายได้ แต่อย่างไรก็ตามข้อดีของการใช้สมการโมเมนต์ก็มีน้ำหนักมากกว่า คือ ในการคำนวณสามารถทำได้อย่างรวดเร็วและมีประสิทธิภาพ โดยไม่จำเป็นต้องคำนวณสมการอนุพันธ์อนุภาคในกลุ่มประชากรซึ่งเป็นสมการเชิงอนุพันธ์ย่อย และเนื่องจากค่าโมเมนต์อันดับต่าง ๆ สามารถนิยามได้ดังนี้

μ_0 นิยามถึง จำนวนของผลึกรวมทั้งหมดที่เกิดขึ้น (total crystal number)

μ_1 นิยามถึง ความยาวเฉลี่ยรวมของผลึกทั้งหมดที่เกิดขึ้น (total crystal length)

μ_2 นิยามถึง พื้นที่ผิวรวมของผลึกทั้งหมดที่เกิดขึ้น (total crystal surface area)

μ_3 นิยามถึง ปริมาตรรวมของผลึกทั้งหมดที่เกิดขึ้น (total crystal volume)

ดังนั้นเราสามารถวัดคุณภาพของผลิตภัณฑ์ในเทอมของค่าโมเมนต์ได้ นอกจากนี้ถ้าต้องการพิจารณาการโตของผลึกในรูปแบบสมการที่ขึ้นกับขนาดผลึก พิจารณาผลของการรวมตัว และการแตกตัวของผลึก สามารถออกแบบสมการใหม่เพื่ออธิบายกระบวนการได้

3.2 กรณีศึกษา (Case study)

ในงานวิจัยนี้ได้ศึกษากระบวนการตกผลึกแบบแบตซ์ของสารละลายโพแทสเซียมซัลเฟต โดยอ้างอิงแบบจำลองทางคณิตศาสตร์จากงานวิจัยของ Shi และคณะ (2006) ในการศึกษาพฤติกรรมเชิงพลวัต (dynamic behavior) ของกระบวนการ และค่าตัวแปรต่างๆ ที่ใช้จำลองพฤติกรรมของกระบวนการนี้แสดงดังตารางที่ 3.1

สำหรับกระบวนการตกผลึกนั้น การดำเนินงานใกล้สภาวะ metastable ซึ่งมีค่าการอิ่มตัวยิ่งยวด (supersaturation) สูง จะทำให้เกิดผลึกขนาดเล็ก (fine crystal) ที่มีความบริสุทธิ์ต่ำเป็นจำนวนมาก นอกจากยังส่งผลกระทบต่อกระบวนการแยกสารด้วย โดยทำให้ต้องใช้เวลาในการกรองแยกสารนานมากขึ้น แต่ในกรณีที่กระบวนการตกผลึกนั้นดำเนินงานที่สภาวะใกล้กับสภาวะอิ่มตัว (saturation) ซึ่งมีค่าการอิ่มตัวยิ่งยวดต่ำกว่า จะทำให้อัตราการโตของผลึกเกิดได้ช้า ส่งผลให้ใช้เวลาในดำเนินงานของกระบวนการนานมากขึ้น ด้วยเหตุนี้จึงนำไปสู่ข้อจำกัดของการดำเนินงานในกระบวนการตกผลึกโดยทั่วไป นั่นคือ ค่าความเข้มข้นของตัวถูกละลายในสารละลาย (solution concentration) จะต้องสูงกว่าความเข้มข้นที่สภาวะอิ่มตัว (saturated concentration, C_s) แต่ต้องมีค่าต่ำกว่าความเข้มข้นที่สภาวะ metastable (metastable concentration, C_m) เนื่องจากความเข้มข้นที่สูงกว่าสภาวะ metastable จะไม่สามารถควบคุมการเกิดของผลึกได้ ทำให้เกิดผลึกขนาดเล็กจำนวนมาก สามารถเขียนเป็นสมการทางคณิตศาสตร์ได้ดังนี้ $C_s \leq C \leq C_m$ โดยสมการแสดงค่าความเข้มข้นที่สภาวะอิ่มตัวและที่สภาวะ metastable แสดงได้ดังสมการ

$$C_s(T) = 6.29 \times 10^{-2} + 2.46 \times 10^{-3}T - 7.14 \times 10^{-6}T^2 \quad (3.20)$$

$$C_m(T) = 7.76 \times 10^{-2} + 2.46 \times 10^{-3}T - 8.10 \times 10^{-6}T^2 \quad (3.21)$$

จากสมการนี้แสดงให้เห็นว่าสภาวะของอุณหภูมิในการดำเนินงานของกระบวนการตกผลึกนี้ ส่งผลโดยตรงต่อค่าความเข้มข้นที่สภาวะอิ่มตัวและสภาวะ metastable งานวิจัยนี้ได้นิยามขนาดผลึก (L) ในทอมรัสมีย์ของทรงกลม (a sphere of equivalent crystal volume, r) โดยกำหนดให้การกระจายขนาดของผลึกเริ่มต้น (initial seed size distribution) เป็นแบบพาราโบลา (parabolic distribution) ในช่วงขนาด 250 ถึง 300 ไมโครเมตร ดังแสดงในสมการ

$$\begin{aligned} f(r, 0) &= 0.0032(300 - r)(r - 250), \quad \text{for } 250 \mu\text{m} \leq r \leq 300 \mu\text{m} \\ \text{and } f(r, 0) &= 0, \quad \text{for } r < 250 \mu\text{m} \text{ and } r > 300 \mu\text{m} \end{aligned} \quad (3.22)$$

ตารางที่ 3.1 ตัวแปรสำหรับกระบวนการตกผลึกของสารละลายโพแทสเซียมซัลเฟต

$b = 1.45$	$g = 1.5$
$k_b = 285.0 \text{ 1/s } \mu\text{m}^3$	$k_g = 1.44 \times 10^8 \mu\text{m/s}$
$E_b / R = 7517.0 \text{ K}$	$E_g / R = 4859.0 \text{ K}$
$U = 1800 \text{ kJ/m}^2 \text{ h K}$	$A = 0.25 \text{ m}^2$
$\Delta H = 44.5 \text{ kJ/kg}$	$C_p = 3.8 \text{ kJ/kg K}$
$M = 27.0 \text{ kg}$	$\rho = 2.66 \times 10^{-12} \text{ g/}\mu\text{m}^3$
$k_v = 1.5$	$t_f = 30 \text{ min}$
$V_j = 0.015 \text{ m}^3$	$F_j = 0.001 \text{ m}^3/\text{s}$
$\rho_j = 1000 \text{ kg/m}^3$	$C_{pj} = 4.184 \text{ kJ/kg K}$

หมายเหตุ อ้างอิงจากงานวิจัยของ Shi และคณะ (2006)

3.3 การออปติไมเซชัน (Optimization)

การออปติไมเซชันเป็นวิธีการที่ใช้แก้ปัญหาหรือออกแบบกระบวนการได้อย่างมีประสิทธิภาพ ปัญหาหลายอย่างที่เกิดขึ้นในงานอุตสาหกรรม เช่น การออกแบบ การก่อสร้าง การดำเนินงาน และการวิเคราะห์ผลการดำเนินงาน สามารถใช้กระบวนการออปติไมเซชันในการแก้ปัญหาได้

องค์ประกอบของปัญหาออปติไมเซชัน

การออปติไมเซชัน คือกระบวนการคิดและตัดสินใจทางคณิตศาสตร์เพื่อหาคำตอบที่ดีที่สุดของปัญหา และมีองค์ประกอบของปัญหาดังนี้

1. ฟังก์ชันวัตถุประสงค์ (objective function) คือ ค่าที่ต้องการหาค่าสูงสุดหรือต่ำสุด ซึ่งปัญหาทางด้านวิศวกรรมส่วนมากจะเป็นการหาจุดสูงสุดหรือต่ำสุดของฟังก์ชัน ตัวอย่างฟังก์ชันวัตถุประสงค์ ได้แก่

กำไร ค่าใช้จ่าย พลังงานที่ใช้ ระยะเวลาเงินทุน หรือต้นทุน เป็นต้น ฟังก์ชันเหล่านี้ส่วนใหญ่จะเป็นฟังก์ชันทางเศรษฐศาสตร์ แต่ไม่จำเป็นต้องเป็นเสมอไป เช่นอาจเป็นฟังก์ชันด้านเทคโนโลยีซึ่งใช้เป็นเกณฑ์ในการตัดสินใจ

2. ตัวแปรตัดสินใจ (decision variable) คือ ตัวแปรที่ไม่ทราบค่า เป็นตัวแปรที่เปลี่ยนแปลงค่าแล้วมีผลต่อฟังก์ชันวัตถุประสงค์ ในขั้นตอนการออปติไมเซชันจะเป็นการเปลี่ยนค่าตัวแปรตัดสินใจเพื่อหาค่าสูงสุด หรือต่ำสุดของฟังก์ชันวัตถุประสงค์ ตัวอย่างตัวแปรตัดสินใจ ได้แก่ อุณหภูมิ ความดัน อัตราการไหล และขนาดของเครื่องปฏิกรณ์ เป็นต้น

3. ข้อจำกัด (constraints) คือ ความสัมพันธ์ของตัวแปรตัดสินใจกับค่าที่แน่นอน เป็นตัวกำหนดขอบเขตการดำเนินการ (feasible region) ของตัวแปรตัดสินใจ หรือพื้นที่ของตัวแปรตัดสินใจที่น่าจะเป็นไปได้ซึ่งมีข้อจำกัดเป็นตัวกำหนดขอบเขต สามารถแบ่งข้อจำกัดออกเป็น 2 ชนิด คือ

1) ข้อจำกัดที่เป็นสมการ (equality constraint) เป็นสมการที่แสดงข้อกำหนดต่างๆ ของกระบวนการ เช่น อัตราการถ่ายเทความร้อนของเครื่องแลกเปลี่ยนความร้อนจะต้องมีค่าเท่ากับ 50 กิโลวัตต์ หรือเป็นสมการแสดงแบบจำลองกระบวนการ เช่น สมการสมดุลมวลสาร หรือสมการสมดุลพลังงาน เป็นต้น

2) ข้อจำกัดที่เป็นอสมการ (inequality constraint) เป็นอสมการที่แสดงข้อจำกัดของการออกแบบและข้อจำกัดต่างๆ เช่น ค่าอัตราการไหลควรมากกว่า หรือเท่ากับศูนย์ หรือ ความดันภายในระบบจะต้องมีค่าไม่เกินค่าจำนวนหนึ่งที่ขอบเขตบน เป็นต้น

รูปแบบทั่วไปของปัญหาออปติไมเซชัน สามารถแสดงได้ดังนี้

ฟังก์ชันวัตถุประสงค์ (objective function)

$$\min_x \Psi(x(t_f), y(t_f), u(t_f), t_f, p)$$

โดยสอดคล้องตามเงื่อนไขต่อไปนี้ (subject to)

$$\frac{dx(t)}{dt} = F(x(t), y(t), u(t), p, t)$$

คือ สมการอธิบายพฤติกรรมของกระบวนการ

$$h(x(t), y(t), u(t), p, t) = 0$$

คือ สมการเงื่อนไข หรือข้อจำกัดต่างๆ ของกระบวนการ

กำหนดค่าเริ่มต้นของตัวแปร

$$x(0) = x_0$$

กำหนดขอบเขตของตัวแปร

$$x(t) \in [x_l, x_u]$$

$$y(t) \in [y_l, y_u]$$

$$u(t) \in [u_l, u_u]$$

$$p(t) \in [p_l, p_u]$$

$$t_f(t) \in [t_{fl}, t_{fu}]$$

โดย x คือ ตัวแปรสแตต (state variable) และในที่นี้กำหนดให้เป็นตัวแปรตัดสินใจ (decision variable) ด้วย y คือ ตัวแปรผลลัพธ์ (output variable) u คือ ตัวแปรควบคุม (controlled variable) p คือตัวแปรที่ไม่ขึ้นกับเวลา (time-independent variable), และ t_f คือเวลาที่สิ้นสุดกระบวนการ (final process time)

ขั้นตอนการอพติไมเซชัน

- ขั้นที่ 1 สร้างแบบจำลองทางคณิตศาสตร์ซึ่งแสดงความสัมพันธ์ของตัวแปรตัดสินใจและตัวแปรตาม
- ขั้นที่ 2 กำหนดตัวแปรตัดสินใจ และ/หรือค่าพารามิเตอร์ ทำการหาค่าโดยระบุขอบเขต ข้อจำกัด และเป้าหมายของการทำการอพติไมเซชัน
- ขั้นที่ 3 เขียนฟังก์ชันวัตถุประสงค์ในรูปของสมการคณิตศาสตร์
- ขั้นที่ 4 กำหนดวิธีการทำอพติไมเซชัน ทั้งนี้ต้องสอดคล้องกับรูปแบบของสมการทางคณิตศาสตร์ที่อธิบายกระบวนการและฟังก์ชันวัตถุประสงค์
- ขั้นที่ 5 ทำการอพติไมเซชัน โดยการใช้วิธีการทางตัวเลข (numerical method) ในการแก้สมการปัญหาอพติไมเซชัน และตรวจสอบผลคำตอบจากการแก้ปัญหาอพติไมเซชัน
- ขั้นที่ 6 ศึกษาวิเคราะห์ความไวของตัวแปรต่างๆ (sensitivity analysis) เพื่อดูว่าตัวแปรหรือพารามิเตอร์ใด มีผลต่อการเปลี่ยนแปลงของฟังก์ชันวัตถุประสงค์อย่างไร

โดยทั่วไปวิธีการทางตัวเลขในการแก้ปัญหาคอพอติไมเซชันนั้นสามารถจำแนกได้ 2 วิธี คือ วิธีทางอ้อม (indirect method) และทางตรง (direct method)

วิธีทางอ้อม

วิธีนี้จะเป็นการเปลี่ยนปัญหาคอพอติไมเซชันให้เป็นสมการเงื่อนไขจำเป้น ในรูปของ two-point boundary value problem (TPBVP) ซึ่งจะคำนวณได้ยากในกรณีที่มีข้อจำกัดของตัวแปรสเทท

วิธีทางตรง

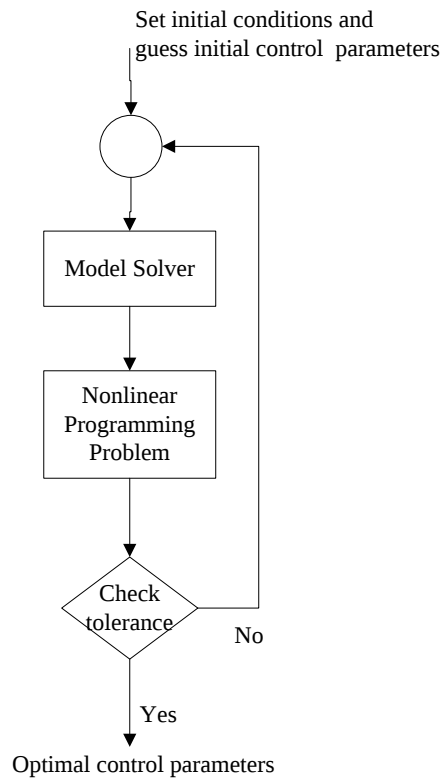
วิธีนี้เป็นการเปลี่ยนปัญหาคอพอติไมเซชันให้อยู่ในรูปปัญหาโปรแกรมอสมการ (nonlinear programming problem, NLP) โดยใช้วิธี discretization ของตัวแปรสเทท หรือทั้งตัวแปรสเททและตัวแปรควบคุม ทำให้สามารถจำแนกวิธีการคำนวณนี้ได้เป็น 2 วิธี คือ

1) Sequential strategy

วิธีการนี้จะทำการ discretization เฉพาะตัวแปรสเททเท่านั้น ซึ่งขั้นตอนในการคำนวณนั้นแสดงดังรูปที่ 3.3 โดยขั้นแรกจะทำการกำหนดค่าเริ่มต้น (initial condition) จากนั้น model solver จะทำการแก้สมการอนุพันธ์ (differential algebraic equation) เพื่อหาค่าฟังก์ชันวัตถุประสงค์ และข้อจำกัดของกระบวนการ ส่งไปยัง nonlinear programming solver เพื่อคำนวณหาค่าตัวแปรที่เหมาะสมชุดใหม่ และส่งค่ากลับไปยัง model solver โดยการคำนวณนี้จะทำการวนซ้ำไปเรื่อยๆ จนกว่าจะได้ค่าที่เหมาะสม ข้อดีของวิธีนี้คือ ปัญหาคอพอติไมเซชันมีขนาดเล็ก เนื่องจากพิจารณาเฉพาะตัวแปรควบคุม แต่อย่างไรก็ตามข้อจำกัดของวิธีนี้คือ การจัดการกับข้อจำกัดของตัวแปรสเททจะทำได้ยาก

2) Simultaneous strategy

วิธีการนี้จะทำการ discretization ทั้งตัวแปรควบคุมและตัวแปรสเทท ซึ่งตัวแปรทั้งสองเหล่านี้จะถูกใช้เป็นตัวแปรตัดสินใจของปัญหาคอพอติไมเซชัน โดยทั้งแบบจำลองกระบวนการและปัญหาคอพอติไมเซชันจะถูกคำนวณพร้อมกัน และสมการข้อจำกัดจะถูกเปลี่ยนให้อยู่ในรูปของสมการพีชคณิต ข้อดีของวิธีนี้คือสามารถจัดการกับข้อจำกัดของตัวแปรสเททได้ แต่อย่างไรก็ตามปัญหาคอพอติไมเซชันที่ได้จะมีขนาดใหญ่ คือมีชุดสมการจำนวนมากที่จะถูกใช้ในการคำนวณ



รูปที่ 3.3 การอพติไมเซชันโดยวิธี sequential

3.4 โครงข่ายประสาทเทียม (Artificial neural network, ANN)

โครงข่ายประสาทเทียม หรือที่มักจะเรียกสั้น ๆ ว่า ข่ายงานประสาท (neural network) คือ แบบจำลองทางคณิตศาสตร์ สำหรับประมวลผลสารสนเทศด้วยการคำนวณแบบคอนเนกชันนิสต์ (connectionist) เพื่อจำลองการทำงานของเครือข่ายประสาทในสมองมนุษย์ ด้วยวัตถุประสงค์ที่จะสร้าง เครื่องมือซึ่งมีความสามารถในการเรียนรู้ การจดจำแบบรูป (pattern recognition) และการอุปมาความรู้ (knowledge deduction) เช่นเดียวกับความสามารถที่มีในสมองมนุษย์ แนวคิดเริ่มต้นของเทคนิคนี้ได้มาจากการศึกษาข่ายงานไฟฟ้าชีวภาพ (bioelectric network) ในสมอง ซึ่งประกอบด้วย เซลล์ประสาท และ จุดประสานประสาท (synapses) แต่ละเซลล์ประสาทประกอบด้วยปลายในการรับกระแสประสาท เรียกว่า เดนไดรต์ (dendrite) ซึ่งเป็นข้อมูลขาเข้า (input) และปลายในการส่งกระแสประสาทเรียกว่า แอกซอน (axon) ซึ่งเป็นเหมือนข้อมูลขาออก (output) ของเซลล์ ซึ่งเซลล์เหล่านี้ทำงานด้วยปฏิกิริยาไฟฟ้าเคมี เมื่อมีการกระตุ้นด้วยสิ่งเร้าภายนอกหรือกระตุ้นด้วยเซลล์ด้วยกัน กระแสประสาทจะวิ่งผ่านเดนไดรต์เข้าสู่นิวเคลียส ซึ่งจะเป็นตัวตัดสินใจว่าต้องกระตุ้นเซลล์อื่น ๆ ต่อหรือไม่ ถ้ากระแสประสาทแรงพอ นิวเคลียสก็จะกระตุ้นเซลล์

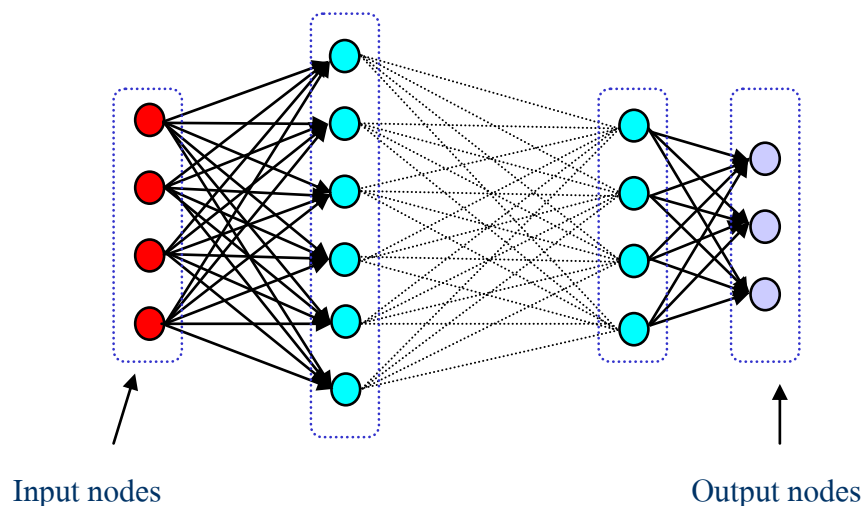
อื่น ๆ ต่อไปผ่านทางแอกซอนของมัน ซึ่งจากลักษณะของการทำงานเช่นนี้ สามารถอธิบายโดยสรุปได้ว่า หน่วยงานประสาทเกิดจากการเชื่อมต่อระหว่างเซลล์ประสาท จนเป็นเครือข่ายที่ทำงานร่วมกัน

สถาปัตยกรรมของโครงข่ายประสาทเทียม (Architecture of neural network)

เป็นการแบ่งลักษณะของการทำโครงสร้างและวิธีการทำงานของโครงข่ายประสาทเทียมออกเป็นแบบต่าง ดังนี้

โครงข่ายการส่งข้อมูลแบบไม่ย้อนกลับ (Feedforward network)

โครงสร้างแบบนี้เป็นสถาปัตยกรรมที่กำหนดให้การส่งข้อมูลจากข้อมูลในชั้นข้อมูลขาเข้า (input layer) เข้ามาภายในชั้นซ่อน (hidden layer) และส่งไปยังข้อมูลขาออก (output layer) โดยมีทิศทางในการไหลของข้อมูลไปในทิศทางเดียวกัน ซึ่งข้อมูลที่ประมวลผลในวงจรข่ายจะถูกส่งไปในทิศทางเดียวจากข้อมูลเข้า ส่งต่อมาเรื่อย ๆ จนถึงข้อมูลออก โดยไม่มีการย้อนกลับของข้อมูล หรือแม้แต่โหนด (nodes) ภายในชั้น (layer) เดียวกันก็ไม่มีการเชื่อมต่อกัน ดังแสดงในรูปที่ 3.4

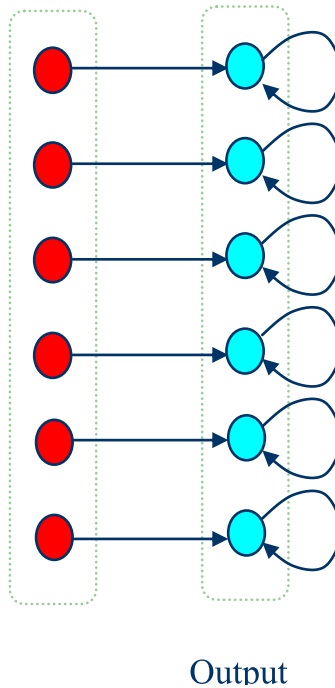


รูปที่ 3.4 โครงข่ายการส่งข้อมูลแบบไม่ย้อนกลับ

โครงข่ายการส่งข้อมูลแบบย้อนกลับ (Feedback network)

โครงสร้างแบบนี้เป็นสถาปัตยกรรมที่กำหนดให้การส่งข้อมูลจากข้อมูลในชั้นข้อมูลขาเข้า (input layer) เข้ามาภายในชั้นซ่อน (hidden layer) และส่งไปยังข้อมูลขาออก (output layer) โดยมีทิศทางในการ

ไหลของข้อมูลไปในทิศทางเดียวกัน ข้อมูลที่ประมวลผลในวงจรข่ายจะถูกส่งไปในทิศทางเดียวจากข้อมูลเข้า ส่งต่อมาเรื่อย ๆ จนถึงข้อมูลออก โดยมีการย้อนกลับของข้อมูล เพื่อให้การจำแนกนั้นมีประสิทธิภาพมากขึ้น นั่นเอง ซึ่งลักษณะการทำงานของโครงข่ายชนิดนี้สามารถแสดงได้ดังรูปที่ 3.5



รูปที่ 3.5 โครงข่ายการส่งข้อมูลแบบย้อนกลับ

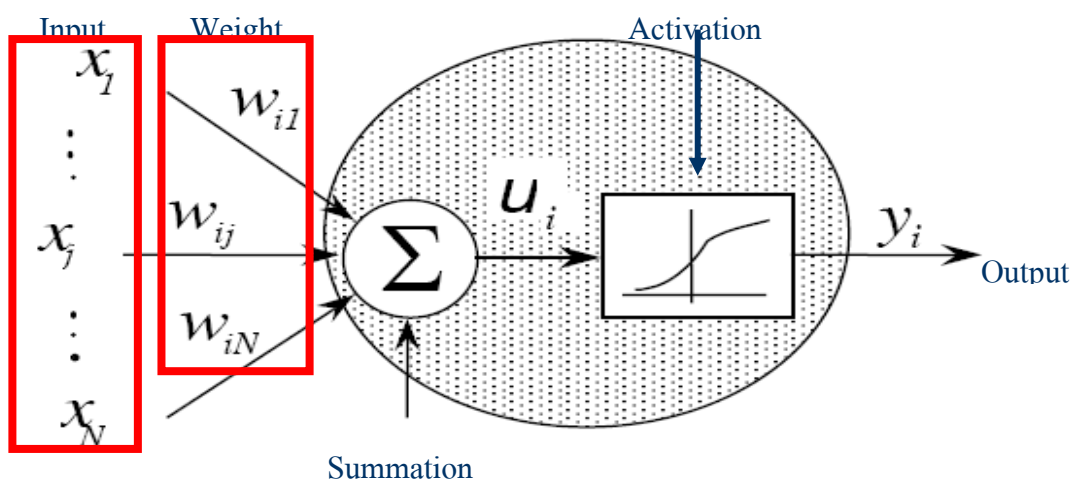
แบบจำลองโครงข่ายประสาทเทียมอย่างง่าย (Perceptron)

เพอร์เซปตรอน (perceptron) เป็นข่ายงานประสาทเทียมประเภทหนึ่ง ที่ได้รับการพัฒนาขึ้นใน ค.ศ. 1957 โดย แฟรงค์ โรเซนบลัทท์ ที่ Cornell Aeronautical Laboratory เพอร์เซปตรอนประกอบด้วยเซลล์ประสาทเทียม หรือนิวรอน อย่างน้อยหนึ่งชั้น ข้อมูลขาเข้าจะถูกส่งตรงไปยังข้อมูลออก โดยผ่านชุดค่าน้ำหนัก (weight) ด้วยเหตุนี้ จึงสามารถพิจารณาว่าเป็นข่ายงานป้อนไปหน้า (feedforward network) แบบพื้นฐานที่สุด นิวรอนแต่ละตัวจะคำนวณผลรวมถ่วงน้ำหนักจากข้อมูลที่เข้ามา ซึ่งก็คือผลรวมของผลคูณระหว่างค่าข้อมูลเข้ากับค่าน้ำหนักของแต่ละตัว ถ้าค่าที่ได้จากการคำนวณนี้มากกว่าขีดแบ่ง (threshold) นิวรอนก็จะให้ค่าข้อมูลออกเท่ากับ 1 ถ้าน้อยกว่าก็จะให้ค่า -1 เพื่อให้ง่ายจึงมักจะกำหนดให้ขีดแบ่งเป็นค่าน้ำหนักตัวหนึ่งของข้อมูลขาเข้าเป็นค่าคงที่ โดยนิวรอนที่ใช้ฟังก์ชันกระตุ้น (activation function) แบบนี้อาจจะเรียกว่า นิวรอนแบบแมคคัลลอค-พิตส์ (McCulloch-Pitts neurons) หรือนิวรอนขีดแบ่ง (threshold

neurons)

ขั้นตอนวิธีการเรียนรู้ที่ง่ายที่สามารถนำมาใช้กับเพอร์เซปตรอน จะถูกเรียกว่า กฎเดลต้า (delta-rule) โดยจะคำนวณค่าความผิดพลาดระหว่างค่าของข้อมูลขาออกที่ได้จากการคำนวณของโครงข่าย กับ ข้อมูลขาออกของตัวอย่าง แล้วนำค่าที่ได้ไปปรับค่าน้ำหนัก โดยนำไปใช้ในรูปแบบของการเคลื่อนลงตามความชัน (gradient descent)

โดยแบบจำลองอย่างง่ายที่ McCulloch-Pitts เซลล์นั้น สามารถแสดงได้ดังรูปที่ 3.6



รูปที่ 3.6 แบบจำลองโครงข่ายประสาทเทียมของ McCulloch-Pitts

ซึ่งเพอร์เซปตรอนอย่างง่ายของ McCulloch-Pitts นั้นจะมีส่วนประกอบที่สำคัญอยู่ 5 ส่วน ได้แก่

1) ข้อมูลนำเข้า (input)

ข้อมูลนำเข้าจะถูกจำแนกตามคุณลักษณะ (attribute) เช่น ถ้าปัญหาที่ระบบโครงข่ายประสาทเทียมจะต้องตัดสินใจ ได้แก่ การอนุมัติเงินกู้ว่าจะให้ผ่านหรือไม่ ข้อมูลนำเข้าก็就会被จำแนกเป็นคุณลักษณะ กล่าวคือ ระดับรายได้ และอายุ เป็นต้น ข้อมูลนำเข้านอกจากจะเป็นข้อความแล้ว ยังสามารถเป็นรูปภาพ หรือเสียงก็ได้ แต่อาจจะต้องผ่านการแปลงให้เป็นสัญลักษณ์หรือตัวเลขเพื่อให้เครื่องสามารถทำความเข้าใจได้ก่อน จากนั้นก็จะเข้าสู่การทำงานที่แท้จริงของระบบโครงข่ายประสาทเทียมที่เริ่มต้นด้วยการนำข้อมูลเข้ามามีน้ำหนัก (weight) ของความสัมพันธ์ระหว่างข้อมูลนำเข้าเหล่านั้นในชั้นแรกภายใต้ขอบเขตของระบบ

2) น้ำหนัก (weight)

เป็นส่วนประกอบที่สำคัญของระบบโครงข่ายประสาทเทียม เนื่องจากเป็นส่วนที่ใช้หา น้ำหนักของความสัมพันธ์ระหว่างข้อมูลนำเข้า ว่าข้อมูลนำเข้าใดมีความสัมพันธ์กับข้อมูลนำเข้าอื่นในระดับใด ซึ่งจะทำให้สามารถเชื่อมโยงไปหาข้อสรุปได้ ด้วยการลองผิดลองถูกในความสัมพันธ์แต่ละแบบ และเก็บไว้เป็นแบบแผนหรือรูปแบบ (pattern) ของประสบการณ์เพื่อการเรียนรู้ของโครงข่าย

3) ฟังก์ชันผลรวม (summation function)

เป็นโครงข่ายที่ทำหน้าที่ในการรวมค่าน้ำหนักที่ได้จากโครงข่ายในชั้นข้อมูลนำเข้า (input) เพื่อสรุปผลความสัมพันธ์ระหว่างข้อมูลนำเข้า และรอการแปลงเป็นสารสนเทศที่มีความหมายในชั้นต่อไป

4) ฟังก์ชันการกระตุ้น (activation function)

เป็นโครงข่ายที่ทำหน้าที่ในการประสาน (integrate) สารสนเทศที่ผ่านการประมวลผลจากโครงข่ายในชั้นต่างๆ แล้วทำการแปลง (transform) ให้กลายเป็นสารสนเทศที่สื่อความหมาย และเป็นประโยชน์ต่อการนำไปใช้ได้เพื่อส่งออกไปเป็นผลลัพธ์ (output)

5) ผลลัพธ์ (output)

ผลลัพธ์ที่ได้จากโครงข่ายประสาทเทียม จะหมายถึงแนวทางในการแก้ไขปัญหา ยกตัวอย่าง เช่น ปัญหาการอนุมัติเงินกู้ เพื่อพิจารณาว่าผู้กู้จะผ่านการอนุมัติหรือไม่ ผลลัพธ์ที่ผู้ใช้จะได้รับคือ การอนุมัติหรือไม่อนุมัติ ซึ่งโครงข่ายประสาทเทียมจะแสดงผลคำตอบโดยใช้สัญลักษณ์แทนคำตอบทั้งหมด นอกจากนี้ ผลลัพธ์ที่ได้จากโครงข่ายหนึ่ง สามารถเป็นข้อมูลนำเข้า (input) ของอีกโครงข่ายหนึ่งได้ ทั้งนี้ เพื่อเป็นข้อมูลนำเข้าของการตัดสินใจแก้ไขปัญหาอื่น เช่น ผลลัพธ์ที่ได้จากการอนุมัติเงินกู้ อาจจะนำไปใช้เป็นข้อมูลนำเข้าเพื่อการอนุมัติสินเชื่อที่อยู่อาศัยได้

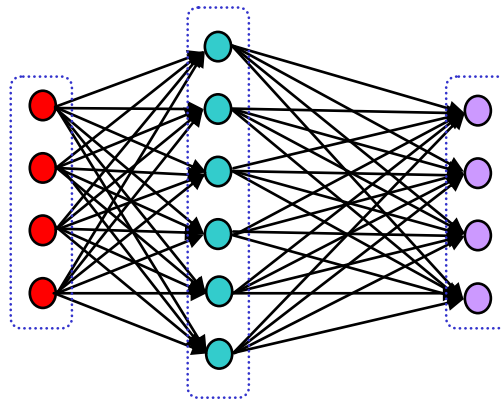
ระดับชั้นของโครงข่าย (Layer network)

พื้นฐานสามัญที่สำคัญของโครงข่ายประสาทเทียม ประกอบไปด้วย 3 ส่วน หรือ 3 ชั้น ได้แก่ ชั้นของข้อมูลนำเข้า (input layer) ที่ถูกเชื่อมต่อกับชั้นซ่อน (hidden layer) และชั้นซ่อนนี้ก็จะเชื่อมต่อกับชั้นของข้อมูลขาออกด้วย (output layer) โดยการทำงานของชั้นข้อมูลนำเข้า จะทำหน้าที่แทนส่วนของข้อมูลดิบที่จะถูกป้อนเข้าสู่เครือข่าย และการทำงานของแต่ละชั้นซ่อนจะถูกกำหนดโดยการทำงานของชั้นข้อมูลนำเข้า และค่าน้ำหนักบนความสัมพันธ์ระหว่างชั้นข้อมูลนำเข้า และชั้นซ่อนนั้นๆ ซึ่งพฤติกรรมการทำงานของชั้นข้อมูลออกนั้น จะขึ้นอยู่กับการทำงานของชั้นซ่อน และค่าน้ำหนักระหว่างหน่วยในชั้นซ่อนนั้น (hidden units) และชั้นข้อมูลออก

โดยสถาปัตยกรรมของชั้น (architecture of layer) ในโครงข่ายประสาทเทียมนี้ สามารถจำแนกได้เป็น 2 ประเภท ได้แก่

1) *Single-layer perceptron (SLP)*

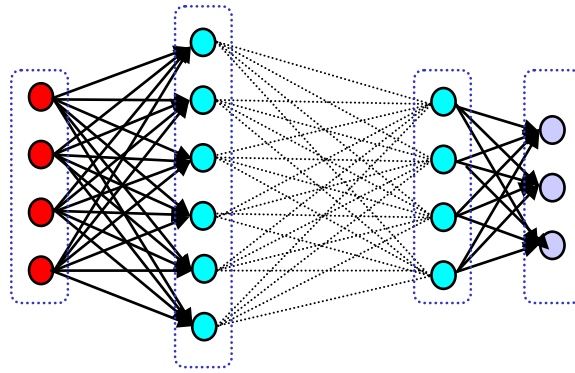
โครงข่ายประสาทเทียมที่ประกอบด้วยชั้นซ่อนเพียงชั้นเดียว จำนวนโหนดของข้อมูลเข้า (input nodes) จะขึ้นอยู่กับจำนวนองค์ประกอบของข้อมูลที่เข้ามา (input data) และการเลือกใช้ฟังก์ชันกระตุ้น (activation function) นั้นก็ขึ้นอยู่กับลักษณะข้อมูลขาออก โดยลักษณะของ Single layer perceptron นี้จะเห็นได้ชัดเจนว่ามีโครงสร้างของชั้นซ่อน เพียงชั้นเดียวเท่านั้น ดังแสดงในรูปที่ 3.7



รูปที่ 3.7 โครงข่ายประสาทเทียมที่ประกอบด้วยชั้นซ่อนเพียงชั้นเดียว

2) *Multi-layer perceptron (MLP)*

โครงข่ายประสาทเทียมชนิดนี้จะประกอบด้วยหลายชั้น โดยในแต่ละชั้นจะประกอบด้วยโหนด (nodes) หรือเปรียบได้กับตัวเซลล์ประสาท (neurons) ที่มีค่าน้ำหนักของเส้นที่เชื่อมต่อ ระหว่างโหนดของแต่ละชั้น (weight, w) ค่า bias vector (b) และค่าเวกเตอร์ของผลลัพธ์ (output vector) ลักษณะของ Multi layer perceptron นี้จะเห็นได้ชัดเจนว่ามีโครงสร้างของชั้นซ่อน (hidden layer) มีมากกว่าหนึ่งชั้น ดังแสดงในรูปที่ 3.8



รูปที่ 3.8 โครงข่ายประสาทเทียมที่ประกอบด้วยชั้นซ่อนหลายชั้น

บทที่ 4

ผลการศึกษา (Results)

งานวิจัยนี้ทำการศึกษาการเพิ่มประสิทธิภาพของกระบวนการตกผลึกแบบลดอุณหภูมิ (cooling crystallization) โดยวิธีการจำลองกระบวนการ (simulation) บนโปรแกรมแมทแล็บ (MATLAB) โดยเลือกระบบสารละลายโพแทสเซียมซัลเฟตจากงานวิจัยของ Shi และคณะ (2006) เป็นกรณีศึกษา โดยการศึกษาวิจัยนี้ได้แบ่งงานเป็น 2 ส่วน ส่วนที่หนึ่ง ทำการศึกษาปรับปรุงประสิทธิภาพการควบคุมกระบวนการตกผลึกแบบแบตช์ โดยใช้เทคนิคการอพติไมเซชันร่วมกับโครงข่ายประสาทเทียม (neural network) และส่วนที่สอง ทำการศึกษาค้นหาแนวทางเพิ่มคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ โดยใช้วิธีการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์ และศึกษาหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมโดยใช้เทคนิคการอพติไมเซชัน

4.1 การศึกษาปรับปรุงประสิทธิภาพการควบคุมกระบวนการตกผลึกแบบแบตช์ โดยใช้เทคนิคการอพติไมเซชันร่วมกับโครงข่ายประสาทเทียม

4.1.1 การควบคุมแบบออฟติมอล

วัตถุประสงค์ของการออกแบบการควบคุมกระบวนการตกผลึกแบบแบตช์ของสารละลายโพแทสเซียมซัลเฟตในงานวิจัยนี้ คือ การหารูปแบบสภาวะอุณหภูมิในการดำเนินงานของกระบวนการที่สามารถลดปริมาณของผลึกขนาดเล็ก (fine crystal) ในเทอมของ μ_3^n ในขณะที่เพิ่มปริมาตรรวมของผลึกขนาดใหญ่ที่โตมาจากการหล่อผลึก (seeded crystal) ในเทอมของ μ_3^s ที่เวลาในการดำเนินงาน 30 นาที (final process time) โดยรูปแบบสมการปัญหาอพติไมเซชันสามารถแสดงได้ดังสมการ

$$\underset{T(t)}{\text{Minimize}} \quad \frac{\mu_3^n(t_f)}{\mu_3^s(t_f)} \quad (4.1)$$

ภายใต้เงื่อนไข

สมการทางคณิตศาสตร์ที่อธิบายพฤติกรรมของกระบวนการตกผลึก

(สมการที่ 3.4-3.6, 3.10-3.11 และ 3.18-3.19)

$$30^\circ\text{C} \leq T(t) \leq 50^\circ\text{C}$$

$$C_s \leq C(t) \leq C_m \quad (\text{สมการที่ 3.20 และ 3.21})$$

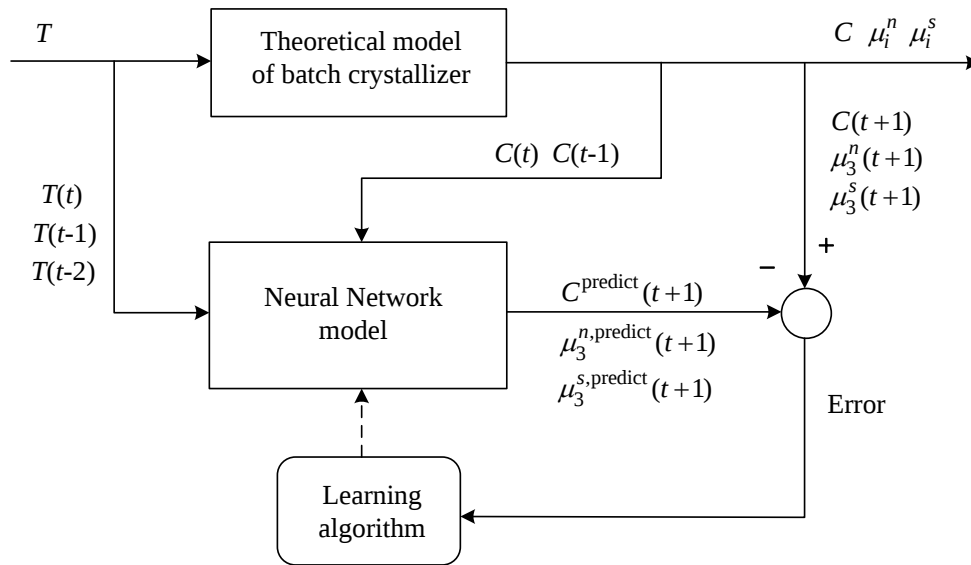
$$\left\| \frac{dT}{dt} \right\| \leq 2 \text{ } ^\circ\text{C} / \text{min}$$

$$\mu_3^s(t_f) \geq 8.3301 \times 10^9 \text{ } \mu\text{m}^3 / \text{g solvent}$$

โดยการแก้สมการปัญหาออปติไมเซชันนี้จะเขียนลงบนโปรแกรมแมทแล็บ (MALAB) และใช้คำสั่งสำเร็จรูปที่มีอยู่ในโปรแกรมนี้ชื่อ *fmincon* ในการแก้ปัญหาเชิงตัวเลขโดยใช้วิธี sequential strategy โดยรูปแบบสภาวะอนุหุมิในการดำเนินงานที่คำนวณได้นั้นจะต้องสอดคล้องกับสมการเงื่อนไขภายใต้ข้อจำกัดของอนุหุมิในการดำเนินงานในช่วง 30 ถึง 50 องศาเซลเซียส โดยความเข้มข้นของสารละลายจะต้องอยู่ในช่วง metastable และการปรับลดค่าอนุหุมิในแต่ละช่วงจะต้องไม่เกิน 2 องศาเซลเซียสต่อนาที่ นอกจากนี้ยังมีสมการที่ใช้นิยามข้อกำหนดคุณภาพของผลึกที่ต้องการด้วย คือกำหนดให้ผลึกที่ได้จากการโตมาจากการล่อผลึกนั้นจะต้องมีปริมาตรรวมสุดท้าย (total volume of seed crystals) มากกว่าค่าที่ได้กำหนดไว้ 8.3301×10^9 ลูกบาศก์ไมโครเมตรต่อน้ำหนัก (กรัม) ของตัวถูกละลาย

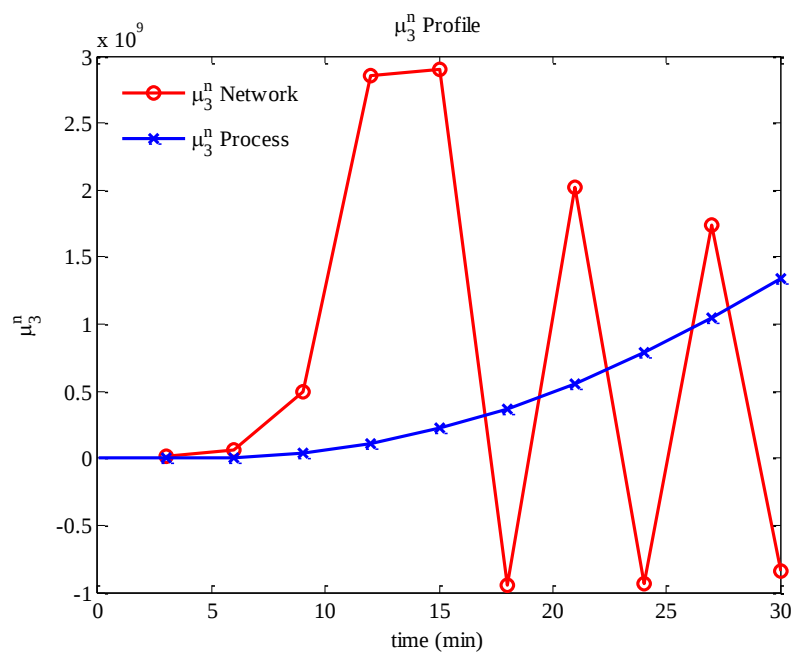
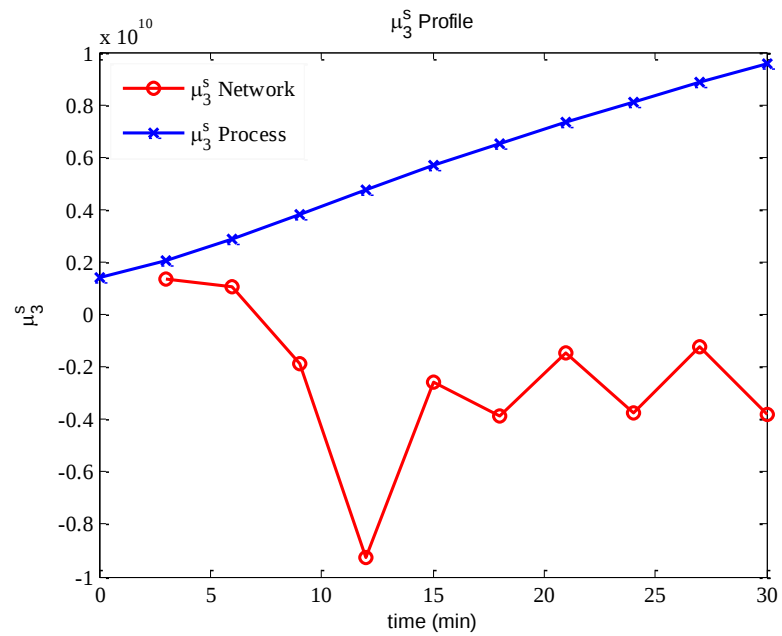
4.1.2 การออกแบบโครงข่ายประสาทเทียมในกระบวนการตกผลึกแบบแบตช์

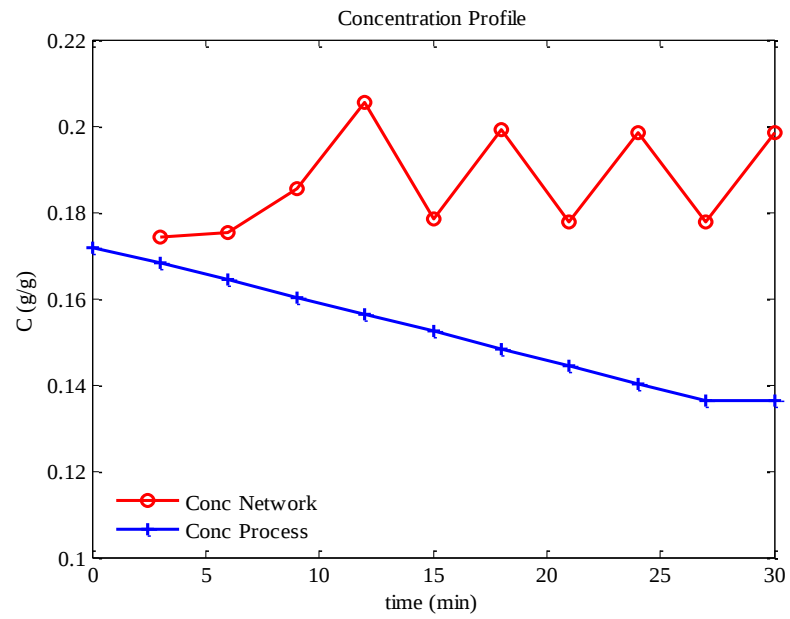
ขั้นตอนแรกในการนำเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมมาใช้ คือการฝึก (train) ให้โครงข่ายนั้นสามารถเรียนรู้และทำนายพฤติกรรมพลวัต (dynamic behavior) และค่าตัวแปรต่างๆ ของกระบวนการตกผลึกได้ เนื่องจากเป็นที่ทราบกันดีว่าในการดำเนินงานจริงนั้นจะมีข้อจำกัดในการวัดค่าตัวแปรบางตัว อาจเนื่องมาจากการวัดค่าตัวแปรเหล่านั้นต้องใช้เวลานาน ยกตัวอย่างเช่น ค่าความเข้มข้นของสารละลาย และ ปริมาตรของผลึกผลิตภัณฑ์ เป็นต้น ดังนั้นหากต้องการออกแบบกระบวนการควบคุมที่มีประสิทธิภาพที่ต้องใช้ข้อมูลจากกระบวนการในการคำนวณหาสภาวะที่เหมาะสมสอดคล้องกับเป้าหมายที่ตั้งไว้ จำเป็นต้องมีการประมาณค่าตัวแปรสำคัญเหล่านี้ ซึ่งในงานวิจัยนี้ได้นำเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมมาใช้ในการประมาณค่าตัวแปรที่เวลาอนาคตของความเข้มข้น ($C(t+1)$) และโมเมนต์อันดับสาม ($\mu_3''(t+1)$ และ $\mu_3^s(t+1)$) โดยใช้ค่าที่วัดได้จากเวลาในอดีตและปัจจุบันของอนุหุมิและความเข้มข้นของสารละลาย จำนวนทั้งหมด 5 ข้อมูล มาใช้ในการฝึกให้โครงข่ายทำนายค่าตัวแปรที่เวลาอนาคตของตัวแปรความเข้มข้นและโมเมนต์อันดับสาม จำนวนทั้งหมด 3 ข้อมูล ดังแสดงในรูปที่ 4.1 และผลจากการทำนายค่าตัวแปรเหล่านี้จะถูกนำมาเปรียบเทียบกับค่าจริงที่ได้จากกระบวนการ หากค่าความแตกต่าง (error) ของผลลัพธ์นี้มากเกินไปค่าที่เรา กำหนดไว้ว่ายอมรับได้ โครงข่ายประสาทเทียมนี้จะต้องปรับแต่งโครงสร้างใหม่ จนกว่าจะทำให้ได้ผลลัพธ์ที่มีค่าความแตกต่างเป็นที่ยอมรับได้ โดยขั้นตอนการเรียนรู้ของโครงข่ายนั้นจะใช้เทคนิค Levenberg-Marquard backpropagation ในการออกแบบโครงสร้างของโครงข่ายประสาทเทียม



รูปที่ 4.1 แสดงวิธีการสอนให้โครงข่ายประสาทเทียมเรียนรู้พฤติกรรมของกระบวนการ

ผลจากการออกแบบโครงสร้างของโครงข่ายประสาทเทียมสามารถแสดงดังรูปที่ 4.2 ถึง 4.4 จากรูปแสดงให้เห็นว่า การใช้โครงสร้างของโครงข่ายประสาทเทียมที่มีจำนวนชั้นซ่อนเพียง 1 หรือ 2 ชั้น (ดังรูปที่ 4.2 และ 4.3 ตามลำดับ) ไม่สามารถให้ผลการทำนายค่าผลลัพธ์ของความเข้มข้นสารละลาย และค่าโมเมนต์อันดับสาม (เส้นสีแดงจุดวงกลม) ได้ใกล้เคียงกับค่าจริงจากกระบวนการ (เส้นสีน้ำเงินจุดกากบาท) ได้นอกจากนี้ค่าความแตกต่างของผลลัพธ์ที่แสดงในผลของค่าความแตกต่างเฉลี่ยยกกำลังสอง (mean square error) จากแต่ละรูปแบบโครงสร้างของโครงข่ายประสาทเทียม ดังแสดงในตารางที่ 4.1 ถึง 4.3 ยังแสดงให้เห็นชัดเจนมากขึ้นว่า โครงสร้างที่เหมาะสมในการนำมาใช้ประมาณค่าตัวแปรความเข้มข้น และค่าโมเมนต์อันดับที่สามคือ โครงสร้างที่มีจำนวน 3 ชั้นซ่อน (ดังรูปที่ 4.4) ซึ่งสามารถเขียนรูปโครงสร้างของโครงข่ายประสาทเทียมได้ดังแสดงในรูปที่ 4.5 ซึ่งประกอบไปด้วยชั้นซ่อนจำนวน 3 ชั้น โดยชั้นที่ 1 จะมี 3 โหนด ชั้นที่ 2 จำนวน 7 โหนด และชั้นที่ 3 จำนวน 5 โหนด โดยข้อมูลนำเข้าจำนวน 5 ข้อมูล ได้แก่ อุณหภูมิ และความเข้มข้นสารละลาย ($T(t)$, $T(t-1)$, $T(t-2)$, $C(t)$, $C(t-1)$) และข้อมูลออกหรือผลลัพธ์คือตัวแปรที่ทำนายได้แก่ ความเข้มข้น และโมเมนต์อันดับ 3 ($C(t+1)$, $\mu_3^n(t+1)$ และ $\mu_3^s(t+1)$) รายละเอียดของโครงสร้างที่เหมาะสมของโครงข่ายประสาทเทียมที่ใช้ในงานวิจัยนี้แสดงในตารางที่ 4.4

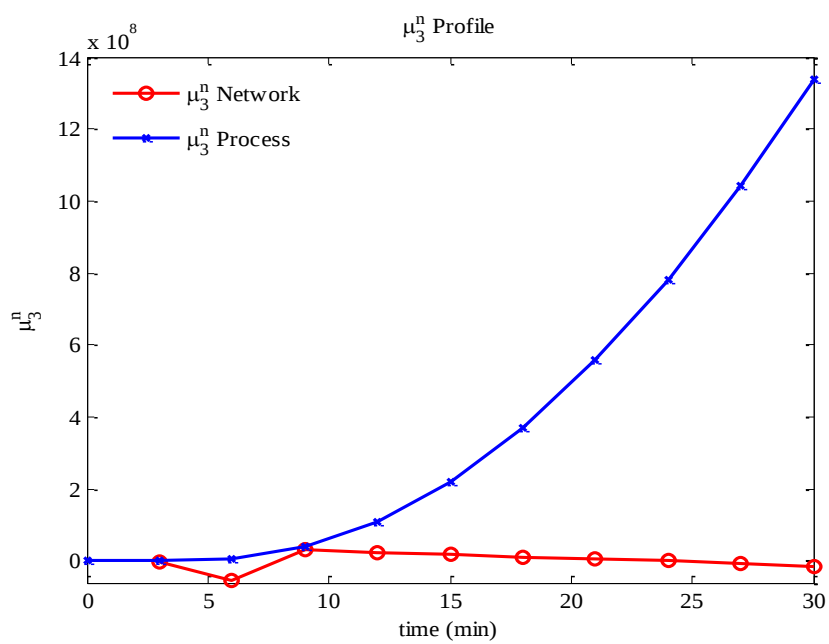
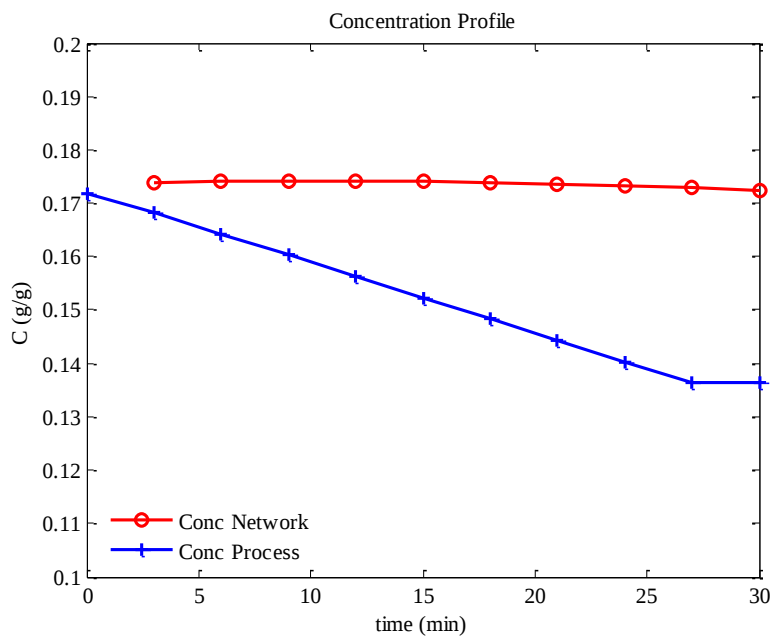


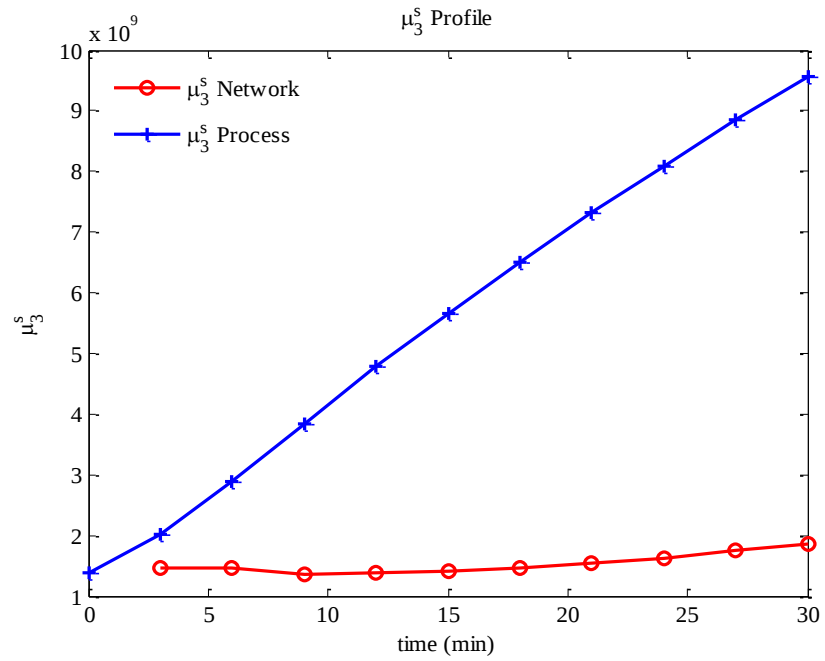


รูปที่ 4.2 ผลการทำนายค่าความเข้มข้นและโมเมนต์อันดับสามของโครงข่ายประสาทเทียมที่มี 1 ชั้นซ่อน

ตารางที่ 4.1 ค่าความแตกต่างเฉลี่ยยกกำลังสอง (mean square error) จากโครงข่ายประสาทเทียมที่มี 1 ชั้นซ่อน

Number of Nodes in Hidden Layer	Mean Square Error (MSE) [$\times 10^{-4}$]	
	log-sigmoid Transfer Function	tan-sigmoid Transfer Function
1	290.58	2.9058
2	8.9324	4.5401
3	6.9829	6.2904
4	18.566	1.9773
5	6.1386	6.4649
6	6.1956	6.2918
7	6.2663	6.0240
8	6.1564	5.6754
9	5.7161	5.6329
10	6.1478	6.5369
11	4.6616	6.3733
12	5.7908	6.4524
13	5.3304	5.7603
14	5.5640	5.9805





รูปที่ 4.3 ผลการทำนายค่าความเข้มข้นและโมเมนต์อันดับสามของโครงข่ายประสาทเทียมที่มี 2 ชั้นซ่อน

ตารางที่ 4.2 ค่าความแตกต่างเฉลี่ยยกกำลังสอง (mean square error) จากโครงข่ายประสาทเทียมที่มี 2 ชั้นซ่อน

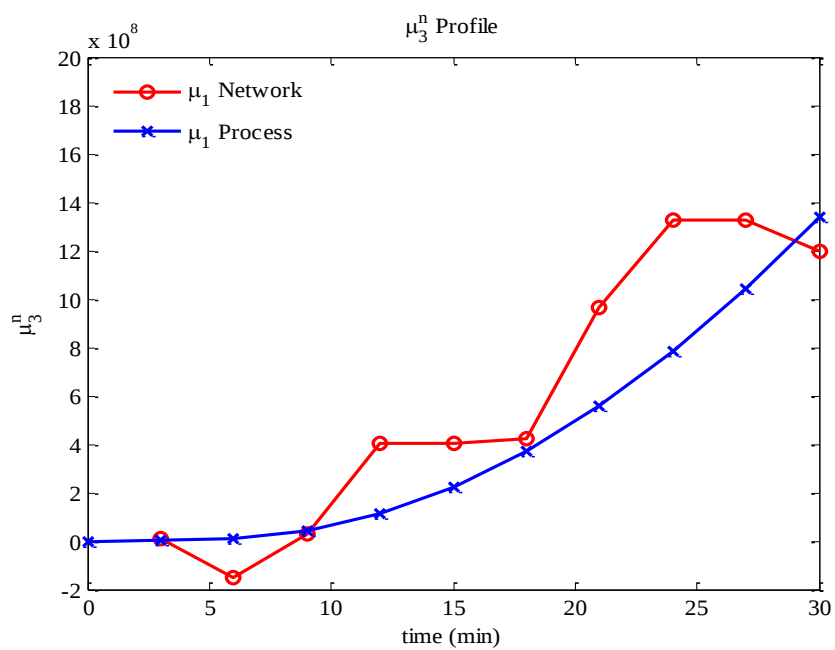
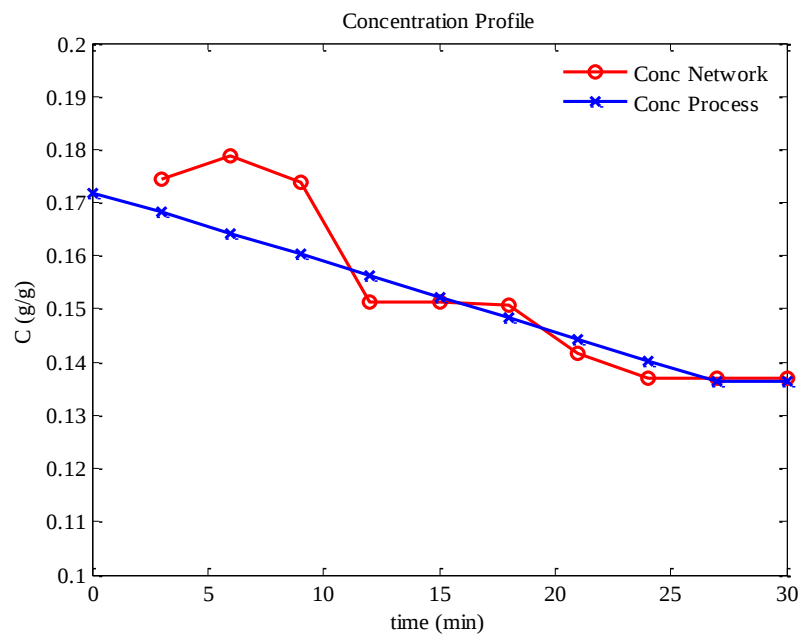
Nodes in 1 st Hidden Layer	Nodes in 2 nd Hidden Layer	Mean Square Error (MSE) [$\times 10^{-4}$]			
		log-log ⁽¹⁾	tan-tan ⁽²⁾	log-tan ⁽³⁾	tan-log ⁽⁴⁾
3	3	141.30	117.55	6.7414	7.2229
	5	5.4388	6.8298	7.0791	6.4274
	7	6.6859	5.5082	5.5983	6.6292
	9	6.3631	6.5603	6.2066	6.6250
5	3	6.6076	6.9436	7.0079	5.6069
	5	6.5512	6.6080	5.2312	6.1628
	7	6.7937	6.3604	6.6079	6.8571
	9	6.0871	5.4009	6.6401	6.8571
7	3	6.5780	5.4294	42.574	26.935
	5	36.353	7.2599	6.6619	5.3287
	7	32.706	5.1269	1.1392	5.5199
	9	6.5507	6.4861	6.3260	6.7798
9	3	4.9698	5.3339	5.9890	6.7233
	5	6.2447	5.6917	6.5645	6.1474
	7	6.5773	4.4371	6.3697	6.5357
	9	4.8290	5.0833	6.5795	5.0078

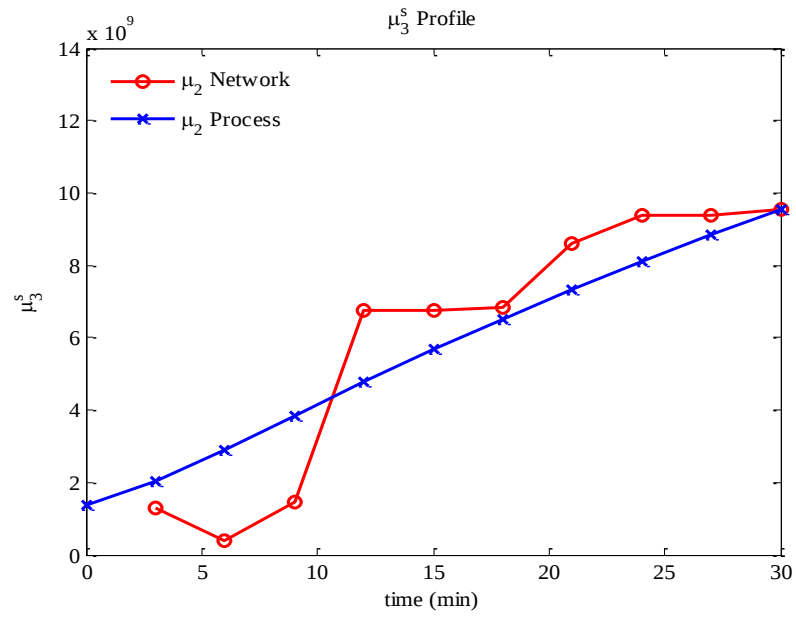
(1) log-sigmoid transfer function in 1st and 2nd hidden layer

(2) tan-sigmoid transfer function in 1st and 2nd hidden layer

(3) log-sigmoid and tan-sigmoid transfer function in 1st and 2nd hidden layer, respectively

(4) tan-sigmoid and log-sigmoid transfer function in 1st and 2nd hidden layer, respectively

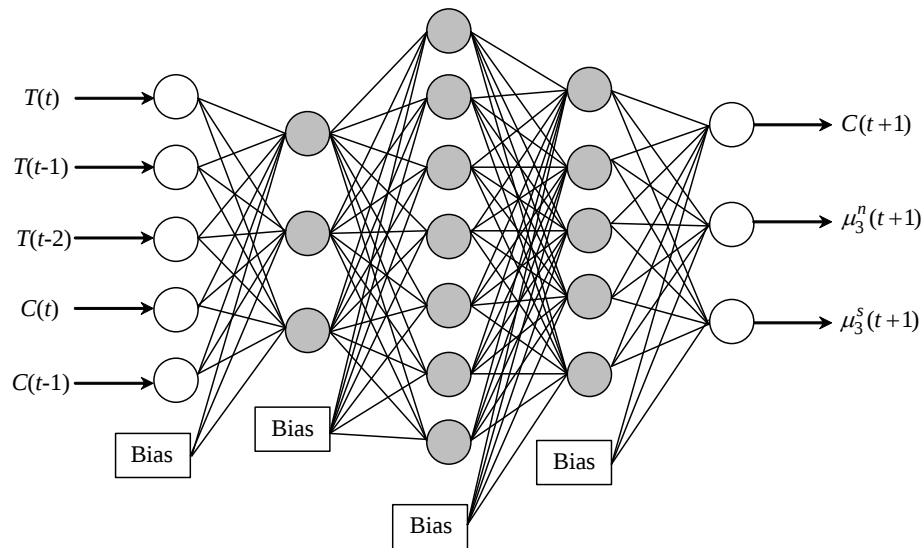




รูปที่ 4.4 ผลการหาค่าความเข้มข้นและโมเมนต์อันดับสามของโครงข่ายประสาทเทียมที่มี 3 ชั้นซ่อน

ตารางที่ 4.3 ค่าความแตกต่างเฉลี่ยยกกำลังสอง (mean square error) จากโครงข่ายประสาทเทียมที่มี 3 ชั้นซ่อน

Nodes in 1 st Hidden Layer	Nodes in 2 nd Hidden Layer	Nodes in 3 rd Hidden Layer	Mean Square Error (MSE) [$\times 10^{-4}$]
3	3	3	293.646
		5	5.8851
		7	6.3296
		9	26.6982
	5	3	6.2416
		5	248.198
		7	6.3224
		9	6.9727
	7	3	6.4698
		5	5.3558
		7	6.6531
		9	6.7970
	9	3	6.5793
		5	6.3281
		7	5.6535
		9	6.4608

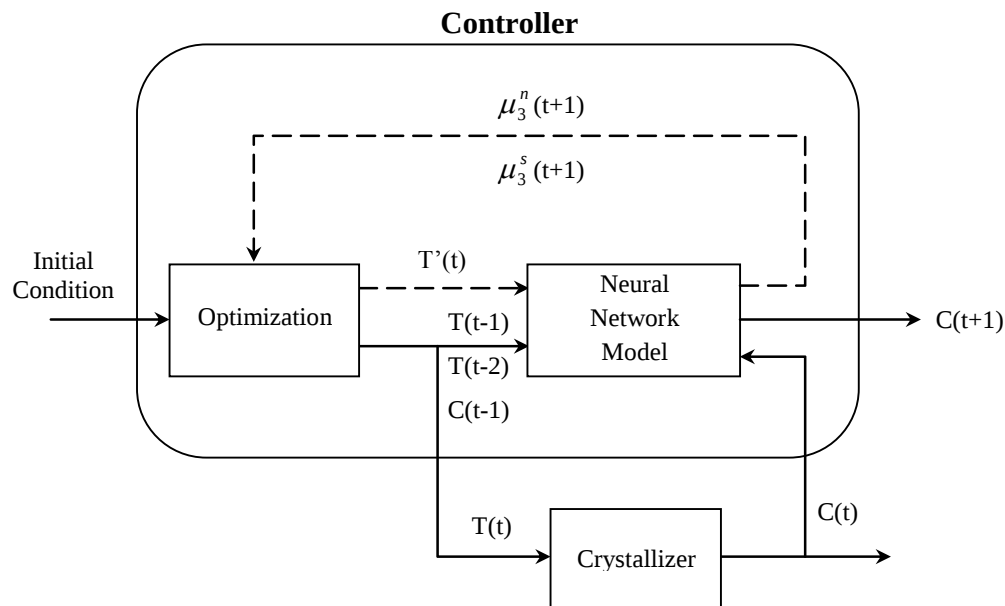


รูปที่ 4.5 โครงสร้างที่เหมาะสมของโครงข่ายประสาทเทียม 3 ชั้นซ้อนที่เลือกใช้ในงานวิจัยนี้

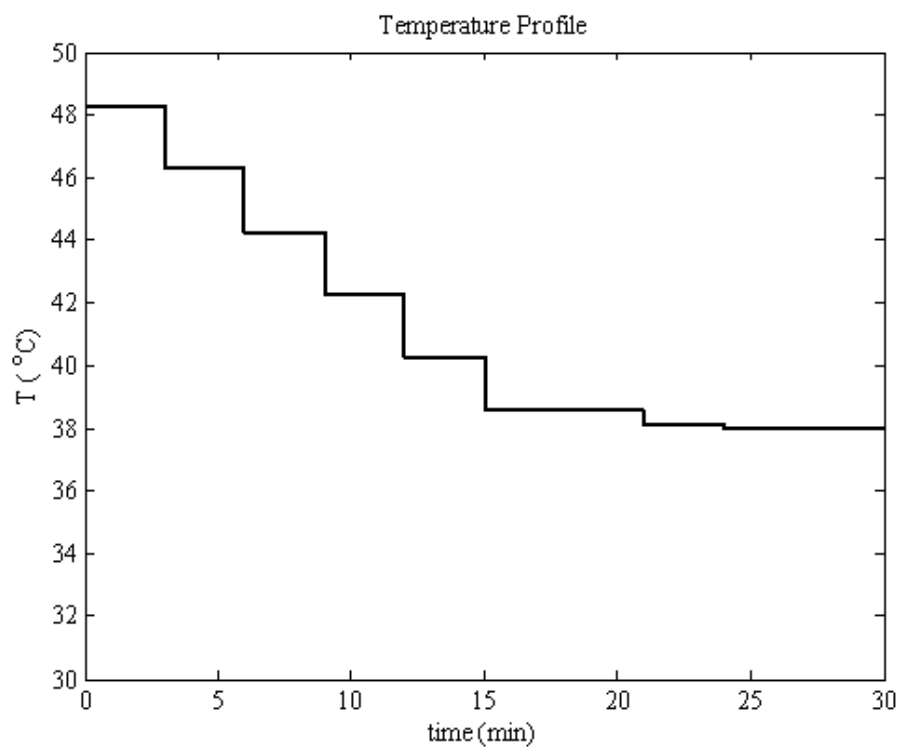
ตารางที่ 4.4 รายละเอียดของโครงสร้างที่เหมาะสมของโครงข่ายประสาทเทียม 3 ชั้นซ้อนที่ใช้ในงานวิจัยนี้

Network Object	Details
Training Algorithm	Back Propagation Algorithm
Network Structure	5-3-7-5-3
Transfer Function of 1 st Hidden Layers	log-sigmoid
Transfer Function of 2 nd Hidden Layers	log-sigmoid
Transfer Function of 3 rd Hidden Layers	log-sigmoid
Transfer Function of Output Layer	linear
Input Data	$T(t), T(t-1), T(t-2), C(t), C(t-1)$
Output Data	$C(t+1), \mu_3^n(t+1), \mu_3^s(t+1)$

เมื่อนำเทคนิคการอพติไมเซชันมาใช้ร่วมกับเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียม เพื่อออกแบบการควบคุมแบบอพติมอล โดยการทำงานร่วมกันระหว่างการอพติไมเซชันเพื่อหารูปแบบสภาวะอุณหภูมิในการดำเนินงานของกระบวนการที่สอดคล้องตามวัตถุประสงค์และเงื่อนไขในการดำเนินงาน ซึ่งในการแก้สมการปัญหาอพติไมเซชันนี้จะใช้ค่าตัวแปรโมเมนต์อันดับสามที่ประมาณค่ามาจากโครงข่ายประสาทเทียม การทำงานร่วมกันของอพติไมเซชันและโครงข่ายประสาทเทียมนี้จะเปรียบเสมือนตัวควบคุม (controller) ของกระบวนการตกผลึก ดังแสดงในรูปที่ 4.6 และผลของรูปแบบสภาวะอุณหภูมิการดำเนินงานที่เหมาะสมที่คำนวณจากอพติไมเซชันพบว่า รูปแบบของการดำเนินงานจะเป็นการลดอุณหภูมิแบบต่อเนื่อง ดังแสดงในรูปที่ 4.7 ซึ่งผลจากสภาวะการดำเนินงานนี้จะทำให้ได้คุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ที่ดีมากกว่าการดำเนินงานแบบดั้งเดิมเดิมโดยการลดอุณหภูมิแบบเชิงเส้น ผลของคุณภาพผลึกในเทอมของโมเมนต์อันดับ 3 แสดงในตารางที่ 4.5 จากตารางจะเห็นได้ว่าเทคนิคการควบคุมแบบที่นำเสนอนี้สามารถลดปริมาตรรวมของผลึกขนาดเล็ก (μ_3^n) ลงได้ 94.62% เมื่อเทียบกับการควบคุมแบบดั้งเดิม และยังเพิ่มปริมาตรรวมของผลึกที่เกิดจากการโต (μ_3^s) ได้ 6.28% ดังนั้นสามารถกล่าวได้ว่าการควบคุมแบบอพติมอลร่วมกับเทคนิคโครงข่ายประสาทเทียมนี้สามารถเพิ่มคุณภาพผลิตภัณฑ์ในกระบวนการตกผลึกแบบเบตซ์ได้



รูปที่ 4.6 โครงสร้างการควบคุมแบบอพติมอล



รูปที่ 4.7 ผลการคำนวณหาสภาวะอุณหภูมิที่เหมาะสมในการดำเนินงาน

ตารางที่ 4.5 คุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ที่เกิดขึ้น

Control Strategies	$\mu_3^n(t_f)$	$\mu_3^s(t_f)$
Linear cooling control	8.917×10^9	9.1121×10^9
Optimal control based on NN model	4.7681×10^8	9.6841×10^9

4.2 การศึกษาการเพิ่มคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์โดยใช้วิธีการดำเนินงานแบบกึ่งแบดซ์ และการหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมโดยใช้เทคนิคการอพติไมเซชัน

งานวิจัยในส่วนนี้ได้ทำการศึกษารูปแบบการดำเนินงานที่เหมาะสมของกระบวนการตกผลึกแบบลดอุณหภูมิที่จะสามารถเพิ่มคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ได้ โดยการนำรูปแบบการดำเนินงานแบบกึ่งแบดซ์มาประยุกต์ใช้และคำนวณหาสภาวะการดำเนินงานของตัวแปรปรับกระบวนการ ได้แก่ อุณหภูมิ (T) และอัตราการป้อนสารละลาย (F) เข้าสู่เครื่องปฏิกรณ์ โดยใช้เทคนิคการอพติไมเซชัน ซึ่งสมการปัญหาอพติไมเซชันนี้แสดงในสมการที่ 4.2 โดยมีวัตถุประสงค์ของการออกแบบการควบคุมคือ ต้องการลดปริมาตรรวมของผลึกขนาดเล็กแสดงในเทอมของโมเมนต์อันดับ 3 ของการเกิดใหม่ของผลึก (μ_3^n) แต่อย่างไรก็ตามผลการหาสภาวะการดำเนินงานที่ได้นี้จะต้องสอดคล้องกับเงื่อนไขข้อจำกัดของอุณหภูมิในการดำเนินงานที่ 30 ถึง 50 องศาเซลเซียส ความเข้มข้นของสารละลายในระบบจะต้องอยู่ในช่วง metastable และที่สำคัญคือ ปริมาตรรวมของผลึกที่โตขึ้นจากผลึกล่อจะต้องเป็นไปตามมาตรฐานที่กำหนด คือ μ_3^s จะต้องมีค่ามากกว่า 8.3301×10^9 ลูกบาศก์ไมโครเมตรต่อกรัมสารละลาย

$$\min_{T(t), F(t)} \mu_3^n(t_f) \quad (4.2)$$

ภายใต้เงื่อนไข

สมการทางคณิตศาสตร์ที่อธิบายพฤติกรรมของกระบวนการตกผลึก

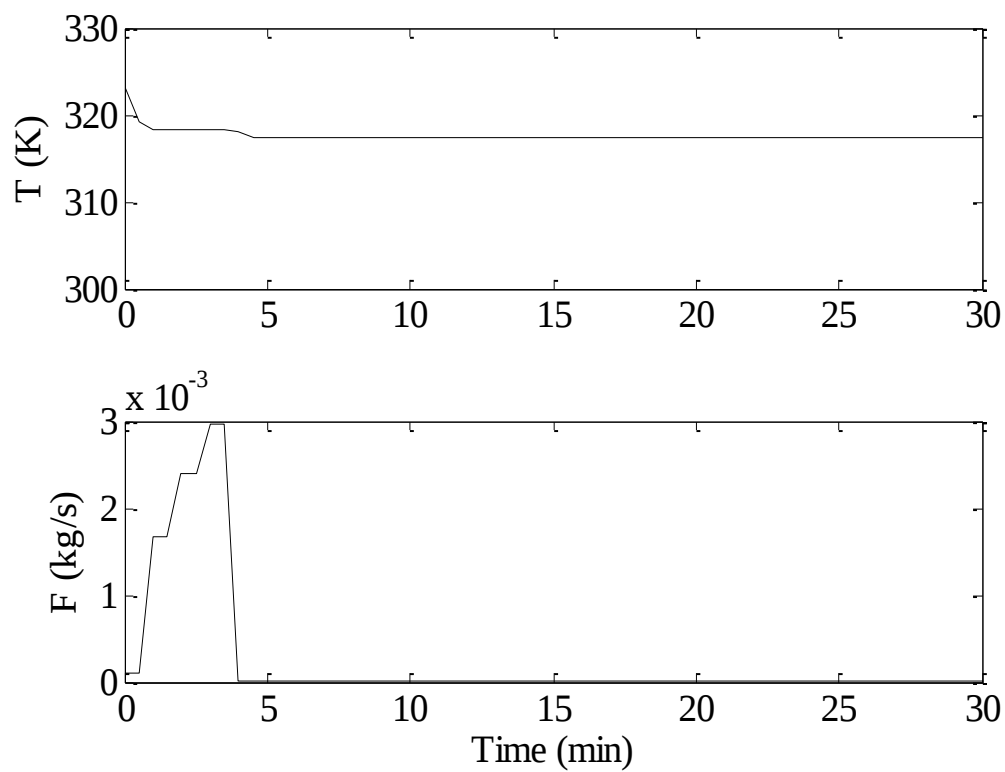
(สมการที่ 3.8-3.9 และ 3.18-3.19)

$$30^\circ\text{C} \leq T(t) \leq 50^\circ\text{C}$$

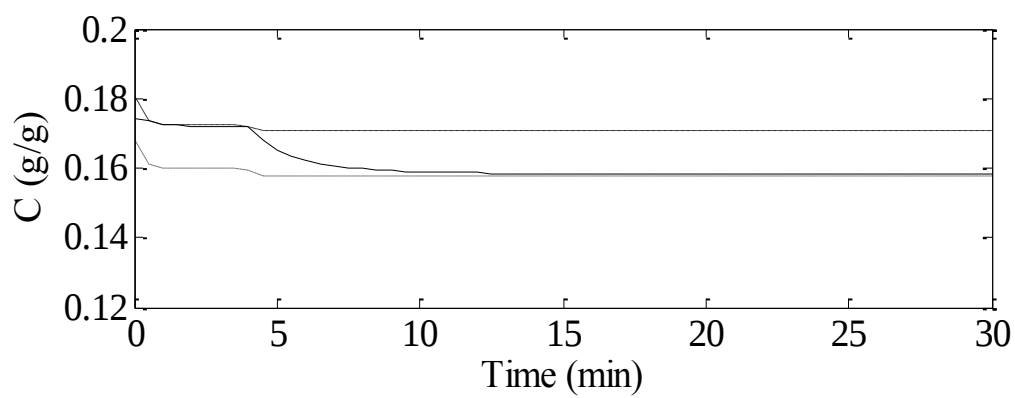
$$C_s \leq C(t) \leq C_m \quad (\text{สมการที่ 3.20 และ 3.21})$$

$$\mu_3^s(t_f) \geq 8.3301 \times 10^9 \mu\text{m}^3 / g \text{ solvent}$$

ผลการศึกษานี้จะเปรียบเทียบคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ที่เกิดขึ้นจากรูปแบบการดำเนินงานแบบกึ่งแบดซ์กับการดำเนินงานแบบแบดซ์ โดยผลจากการใช้เทคนิคการอพติไมเซชันในการหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมของการดำเนินงานแบบกึ่งแบดซ์และแบบแบดซ์แสดงดังรูปที่ 4.8 และ 4.9 ตามลำดับ โดยกรณีของการดำเนินงานแบบกึ่งแบดซ์นั้น ตัวแปรปรับกระบวนการ ได้แก่ อุณหภูมิ และอัตราการป้อนสารละลาย ส่วนกรณีของการดำเนินงานแบบแบดซ์นั้นจะมีเพียงตัวแปรอุณหภูมิเท่านั้นที่ใช้ในการปรับกระบวนการ

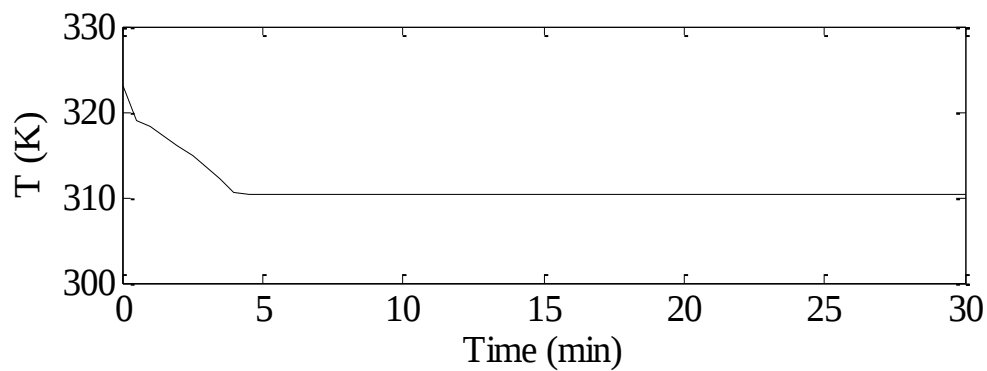


(ก)

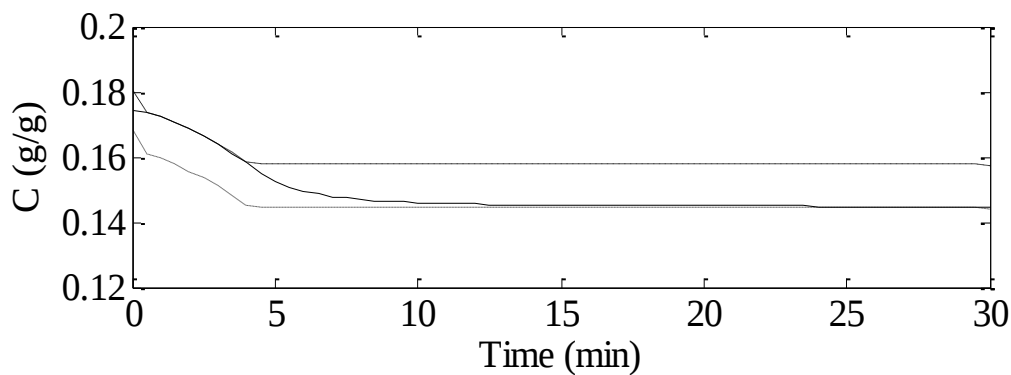


(ข)

รูปที่ 4.8 ผลการคำนวณหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมของการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์ (รูป ก) และผลของความเข้มข้นสารละลาย (รูป ข) โดย C_s : จุด, C : เส้นทึบ, C_m : เส้น



(ก)



(ข)

รูปที่ 4.9 ผลการคำนวณหาสภาวะการดำเนินงานที่เหมาะสมของการดำเนินงานแบบแบตเตอรี่ (รูป ก) และผลของความเข้มข้นสารละลาย (รูป ข) โดย C_s : จุด, C : เส้นทึบ, C_m : เส้นประ

ผลจากการดำเนินงานของกระบวนการตกผลึกแบบกึ่งแบตช์และแบตช์นั้น พบว่าคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ที่ได้จะมีค่าแตกต่างกันดังแสดงในตารางที่ 4.6 ซึ่งจากข้อมูลในตารางจะเห็นว่าการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์นั้นจะให้ปริมาณรวมของผลึกขนาดเล็กในเทอมของโมเมนต์อันดับสาม (μ_3^n) มากกว่าการดำเนินงานแบบแบตช์ เมื่อทำการวิเคราะห์ถึงจำนวนผลึกขนาดเล็กที่เกิดขึ้นในเทอมของโมเมนต์อันดับศูนย์ (μ_0^n) พบว่ารูปแบบการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์จะให้จำนวนผลึกที่มากกว่า นอกจากนี้ยังให้ผลของปริมาณรวมของผลึกขนาดใหญ่เทอมของโมเมนต์อันดับสาม (μ_3^s) มากกว่าด้วย เมื่อพิจารณาผลที่เกิดขึ้นนี้จะพบว่าค่าโมเมนต์อันดับสาม μ_3^s จากการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์นั้นมีค่าสูงมากกว่าค่าที่กำหนดไว้ ดังนั้นหากเราพิจารณาในกรณีที่ต้องการควบคุมคุณภาพผลึก μ_3^s ให้มีค่าตามที่กำหนดไว้ ($\mu_3^s \approx 8.3301 \times 10^9$) ดังแสดง

ในตารางที่ 4.7 จะพบว่ารูปแบบการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์นั้นสามารถลดปริมาณการใช้สารละลายลงได้เหลือเพียง 25.36 กิโลกรัม จากเดิม 27 กิโลกรัม หรือเทียบได้กับการลดการใช้วัตถุดิบตั้งต้น 6% นอกจากนี้ในกรณีที่ยังคงใช้ปริมาณสารละลายเท่าเดิม คือ 27 กิโลกรัม ก็จะใช้เวลาในการดำเนินงานลดลงเหลือเพียง 17 นาที จากเดิม 30 นาที หรือเทียบได้กับการลดระยะเวลาในการดำเนินงานลง 43% จากผลการศึกษานี้แสดงให้เห็นว่าการใช้รูปแบบการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์สามารถเพิ่มประสิทธิภาพในการดำเนินงานในแง่ของการเพิ่มมูลค่าทางเศรษฐศาสตร์คือต้นทุนในการดำเนินงานของกระบวนการตกผลึกได้

ตารางที่ 4.6 ผลเปรียบเทียบคุณภาพของผลึกที่เกิดขึ้นที่ปริมาณสารละลาย (M) 27 กิโลกรัม

Seeded Crystallization	$\mu_0^n(t_f)$	$\mu_3^n(t_f)$	$\mu_3^s(t_f)$
Semi-batch process	470	7.0039×10^8	8.7903×10^9
Batch process	365	6.6436×10^8	8.3380×10^9

ตารางที่ 4.7 ผลเปรียบเทียบคุณภาพของผลึกที่เกิดขึ้นที่สภาวะการดำเนินงานต่างๆ

Seeded Crystallization		$\mu_3^n(t_f)$	$\mu_3^s(t_f)$
At $t_f = 30.0$ min	$M = 25.36$ kg	5.8719×10^8	8.3381×10^9
At $M = 27.0$ kg	$t_f = 17.0$ min	4.2899×10^8	8.3376×10^9

บทที่ 5

สรุปผลการศึกษา (Conclusion)

งานวิจัยนี้ศึกษาการเพิ่มประสิทธิภาพของกระบวนการตกผลึกแบบลดอุณหภูมิ โดยใช้สมการทางคณิตศาสตร์ของโพแทสเซียมซัลเฟตในการจำลองพฤติกรรมทางพลวัตของกระบวนการตกผลึก ซึ่งการศึกษานี้แบ่งเป็น 2 ส่วน โดยส่วนแรกนั้นได้ทำการศึกษาปรับปรุงประสิทธิภาพการควบคุมแบบออปติมอลในกระบวนการตกผลึกแบบแบตช์ โดยใช้เทคนิคการออปติไมเซชันร่วมกับโครงข่ายประสาทเทียมในการประมาณค่าตัวแปรที่สำคัญในการออกแบบการควบคุมซึ่งได้แก่ ความเข้มข้นของสารละลาย และโมเมนต์อันดับสาม (C , μ_3'' และ μ_3') เพื่อหาสถานะอุณหภูมิการดำเนินงานที่เหมาะสมที่สามารถลดปริมาตรรวมของผลึกขนาดเล็กในเทอมของโมเมนต์อันดับสาม μ_3'' และเพิ่มปริมาตรรวมของผลึกขนาดใหญ่ที่โตมาจากการล่อผลึกในเทอมของโมเมนต์อันดับสาม μ_3' ได้ ผลจากการศึกษาสามารถกล่าวได้ว่าเทคนิคการควบคุมแบบออปติมอลร่วมกับโครงข่ายประสาทเทียมตามที่ได้ออกแบบนี้สามารถเพิ่มคุณภาพของผลึกผลิตภัณฑ์ได้ เนื่องจากสามารถลดปริมาตรรวมของผลึกขนาดเล็กลงได้ 94.62% และเพิ่มปริมาตรรวมของผลึกที่เกิดจากการโตได้ 6.28% สำหรับในส่วนที่สองนั้น ได้ทำการศึกษาหาแนวทางเพิ่มคุณภาพผลึกผลิตภัณฑ์โดยใช้วิธีการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์ร่วมกับเทคนิคการออปติไมเซชัน เพื่อหาสถานะการดำเนินงานของอุณหภูมิและอัตราการป้อนสารละลายในการที่จะลดปริมาตรรวมของผลึกขนาดเล็ก (μ_3'') ในขณะที่ปริมาตรรวมของผลึกที่โตจากการล่อผลึก (μ_3') นั้น จะต้องมีความเป็นไปตามข้อกำหนดของผลิตภัณฑ์ที่ได้ออกแบบไว้ และผลจากการศึกษานี้แสดงให้เห็นว่า รูปแบบการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์นั้นสามารถเพิ่มประสิทธิภาพของกระบวนการตกผลึกในแง่ของการเพิ่มมูลค่าทางเศรษฐศาสตร์ของต้นทุนในการผลิตได้ เนื่องจากการดำเนินงานแบบกึ่งแบตช์นี้สามารถลดปริมาณการใช้สารละลายซึ่งเป็นวัตถุดิบตั้งต้นของกระบวนการลงได้ 6% หรือในกรณีที่ใช้สารละลายปริมาณเท่าเดิมก็สามารถลดระยะเวลาในการดำเนินงานลงได้ 43%

เอกสารอ้างอิง (References)

- Akesson, B. M., and Toivonen, H. T., A neural network model predictive controller, Journal of Process Control (2006).
- Braatz, R., Advance control of crystallization processes, Annual Reviews in Control 26 (2002) 87-99.
- Choong, K., and Smith, R., Novel strategies for optimization of batch, semi-batch and heating/cooling evaporative crystallization, Chem. Eng. Sci. 59 (2004) 329-343.
- Costa, C., Costa, A., and Filho, R., Mathematical modeling and optimal control strategy development for an adipic acid crystallization process, Chem. Eng. Processing 44 (2005) 737-753.
- Costa, C., and Filho, R., Evaluation of optimization techniques and control variable formulations for a batch cooling crystallization process, Chem. Eng. Sci. 60 (2005) 5312-5322.
- Edgar, T., and Himmelblau, D., Optimization of chemical processes, McGraw-Hill (2001).
- Georgieva, P., and De Azevedo, S. F., Application of Feed Forward Neural Networks in Modeling and Control of a Fed-Batch Crystallization Process, Transactions on Engineering, Computing and Technology (2006) 1305-5313.
- Goncalves, L., Giordano, R., and Giordano, R., Mathematical modeling of batch and semibatch reactors for the enzymic synthesis of amoxicillin, Process Biochem. 40 (2005) 247-256.
- Hojjati, H., and Rohani, S., Cooling and seeding effect on supersaturation and final crystal size distribution of ammonium sulfate in a batch crystallizer, Chem. Eng. Process. 44 (2005) 949-957.
- Hu, Q., Rohani, S., and Jutan, A., Modeling and optimization of seeded batch crystallizers, Comp. Chem. Eng. 29 (2005) 911-918.

- Lang, Y., Cervantes, A., and Biegler, L., Dynamic optimization of a batch cooling crystallization process, *Ind. Eng. Chem. Res.* 38 (1999) 1469-1477.
- Miller, S., and Rawings, J., Model identification and control strategies for batch cooling crystallizers, *AIChE J.* 40 (1994) 1312-1327.
- Mjalli, F. S., Al-Asheh, S., and Alfadala, H. E., Use of artificial neural network black-box modeling for the prediction of wastewater treatment plants performance, *Journal of Environmental Management.* 83 (2007) 329–338.
- Nagy, Z. K., Model based control of a yeast fermentation bioreactor using optimally designed artificial neural networks, *Chem. Eng. J.* 127 (2007) 95–109.
- Shi, D., El-Farra, N., Li, M., Mhaskar, P., and Christofides, P., Predictive control of particle size distribution in particulate processes, *Chem. Eng. Sci.* 61 (2006) 268-281.
- Zhang, G., and Rohani, S., On-line optimal control of a seeded batch cooling crystallizer, *Chem. Eng. Sci.* 58 (2003) 1887-1896.
- Zhang, J., Batch Process Modeling and Optimal Control Based on Neural Network Models. *Acta Automatica Sinica.* Vol. 31, No. 1. (2005) 19-31.

ผลลัพธ์ที่ได้จากโครงการ (Outputs)

ผลงานตีพิมพ์ในวารสารวิชาการนานาชาติ

1. Paengjuntuek, W., Thanasinthana, L., Arpornwichanop, A., Neural network-based optimal control for a batch crystallization process, *Neurocomputing Journal* (revised). (IF-2009 = 1.440) แสดงในภาคผนวก ก
2. Paengjuntuek, W., Arpornwichanop, A., Dynamic optimization of a semi-batch crystallization for potassium sulfate production, *Korean Journal of Chemical Engineering* (submitted). (IF-2009 = 0.893) แสดงในภาคผนวก ข

ผลงานเผยแพร่ในที่ประชุมวิชาการระดับนานาชาติ

1. Paengjuntuek, W., Arpornwichanop, A., Study of cooling crystallization performance, 17th Regional Symposium on Chemical Engineering (RSCE 2010), 22nd - 23rd November 2010, Queen Sirikit National Convention Center, Bangkok, Thailand.
แสดงในภาคผนวก ค

ภาคผนวก ก

Neural network-based optimal control of a batch crystallizer

(accepted for publication in Neurocomputing Journal)

Submitted to Neurocomputing

Type of Contribution: Research article

Neural Network-Based Optimal Control of a Batch Crystallizer

Woranee Paengjuntuek ^a, Linda Thanasinthana ^b and Amornchai Arpornwichanop ^{b,*}

^a Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering,
Thammasat University, Patumthani 12120, Thailand

^b Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering,
Chulalongkorn University, Bangkok 10330, Thailand

* Corresponding author. Tel.: +66-2-2186878; fax.: +66-2-2186877

Email: Amornchai.A@chula.ac.th. (A. Arpornwichanop)

Abstract

In batch crystallization, the control of size and shape distributions of crystal product is known to be a difficult and challenging task. Although various model-based control strategies have been widely implemented, the effectiveness of such the control strategies depends heavily on the exact knowledge of crystallization of which the dynamic behavior is complicated and highly nonlinear. In this study, a neural network-based optimal control was proposed to regulate the batch crystallization of potassium sulfate chosen as a case study. A neural network model of the batch crystallizer was first developed to capture the nonlinear dynamics of crystallization in terms of the solution concentration within the batch crystallizer and the moment variables that relate to a crystal product quality over a prediction horizon. Then, the developed neural network model was incorporated in an optimal control framework to find an optimal operating temperature profile for improving the quality of the crystal product. The simulation results showed that the neural network can predict the final product properties and the optimal control integrated with the developed neural network gives a better control performance compared to a conventional linear cooling control technique.

Keywords: Batch Crystallization; Neural Network; Optimal Control; Simulation

1. Introduction

Crystallization is an economically important separation and purification process, which has been widely applied for chemical, pharmaceutical, microelectronic, and food industries. Generally, the operating condition of crystallization processes has direct effect on not only product qualities, i.e., crystal purity, shape and size distribution, but also downstream operations, i.e., filtration, drying, and formulation [1]. However, the primary bottleneck to the efficient operation of a crystallizer is associated with difficulties in controlling the size and shape distributions of crystals produced. If a crystal size distribution (CSD) is not controlled properly, it can cause the off-specification product and difficulties in the subsequent operations, leading to long filtration or drying time [2].

Batch crystallizations are often used in the production of low-volume and high-value chemicals. Moreover, the operation of crystallizers in a batch mode offers the advantage of achieving products with a narrow CSD and a large mean crystal size. In general, the final CSD of batch crystallization is closely related to the supersaturation condition, a non-equilibrium driving force for crystallizations, which is a function of crystallizer temperature. As a consequence, the control of the operating temperature at an optimal condition is crucial for obtaining the crystal product with desired quality.

In the past years, various traditional cooling methods such as linear cooling and natural cooling were widely investigated [3]. Presently, there is a growing interest in the implementation of an optimal control approach to determine an optimal operation policy in terms of crystallization temperatures. The aim is to improve the crystal product quality at the final batch time, which is usually represented by the CSD or other related properties such as mean crystal size, seeded crystal size, mass of seeded or nucleated crystals, and the variance of the product CSD [2,4-6]. However, it is found that the effectiveness of the optimal control depends heavily on the exact knowledge of the system's model. With the limited understanding of complex and highly nonlinear systems like a crystallization process, the optimal control would not perform as expected due to model mismatch. One of the most effective techniques to handle with such a situation is a neural network (NN). An obvious advantage of NN is its universal character in approximating different physical phenomena with similar computational structure. Moreover, the ability to approximate

complex nonlinear relationships from process data without prior knowledge of the model structure makes the NN a very attractive alternative to the classical modeling techniques [7]. There are a number of studies concerning about various applications of NN [8]. For example, Mjalli et al. [9] presented the study on the use of NN model to predict the performance of a wastewater treatment plant. The results indicated that the NN-based model has many favorable features such as efficiency, generalization, and simplicity, which makes it an attractive choice for modeling complex systems. Moreover, NN has been applied successfully in the identification and control of dynamic systems. Nagy [10] demonstrated the ability of NN to model and control complex nonlinear biochemical processes. The simulation results were presented to demonstrate that the NN model can achieve a good generalization and integrate with a model predictive control. Arpornwichanop and Shomchoam [11] presented the application of a feedforward NN to on-line estimation of unmeasured substrate concentration which is employed for determining the optimal substrate feed rate for a fed-batch fermentation process. The simulation results showed that the NN model is capable of capturing the essential features of the process.

Due to the predictive capability of NN for complex systems, the aim of this work is focused on the utilization of NN for modeling and control of a batch crystallization process. To attain such a goal, a NN model of the batch crystallization is first developed. As actual process data for NN training are limited available, in this study, they are assumed to be generated from simulations of batch crystallization in which the production of potassium sulfate is chosen as a case study [12]. An optimal control problem is then formulated using the developed NN model to determine an optimal operating policy of the crystallizer in terms of cooling temperature. The performance of the proposed optimal control strategy is compared with other conventional control methodologies.

2. Batch crystallization process

Crystallization occurs only if the system is supersaturated. For the formation of crystals, two steps are required: (1) the birth of a new crystal called nucleation and (2) the growth of the nucleated crystal. The driving potential for such the processes is the nonequilibrium state of the system, which is measured by a relative supersaturation (S):

$$S = \frac{C - C_s(T)}{C_s(T)} \quad (1)$$

where C is the solution concentration and C_s is the saturation concentration depending on the solution temperature (T).

To represent a batch crystallization process, a reduced-order moment model of the nuclei and seed classes of crystals was employed to explain the dynamic behavior of the process as follows [13]:

$$\begin{aligned} \frac{d\mu_0^n}{dt} &= B(t), \\ \frac{d\mu_i^n}{dt} &= iG(t)\mu_{i-1}^n(t), \quad i=1, 2, 3 \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \mu_0^s &= \text{constant}, \\ \frac{d\mu_i^s}{dt} &= iG(t)\mu_{i-1}^s(t), \quad i=1, 2, 3 \end{aligned} \quad (3)$$

where $B(t)$ and $G(t)$ are, respectively, the nucleation and growth rates of crystals and μ_i ($i = 0, \dots, 3$), which is the summation of μ_i^n and μ_i^s , represents the average product quality in terms of the total of number, length, surface area, and volume of crystals, respectively.

Without consideration of crystal agglomeration or breakage phenomena, mass balance described the changes in the concentration of solution in the batch crystallizer can be expressed as:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -3\rho k_v G(t)\mu_2(t) \quad (4)$$

where ρ is the density of crystals and k_v is the volumetric shape factor.

The model of crystallization is completed by defining the kinetic processes that relate the dynamics of crystal population to the state of the bulk system. This involves the determination of rate expressions for crystal nucleation and growth. These processes are related to the relative supersaturation (S) as follows:

$$B(t) = k_b e^{-E_b/RT} S^b \mu_3(t) \quad (5)$$

$$G(t) = k_g e^{-E_g / RT} S^g \quad (6)$$

where E_b is the nucleation activation energy, E_g is the growth activation energy, and b and g are the exponent terms relating the nucleation rate and the growth rate to the supersaturation, respectively.

The control purpose of a crystallization process is to manage the nucleation and growth rates of crystal to achieve a desired crystal size. Well-controlled crystallization process is usually operated in the metastable zone bounded by the saturation concentration and the metastable limit, $C_s \leq C \leq C_m$, in order to avoid uncontrolled nucleation of crystals. In this study, the seeded batch crystallizer of potassium sulfate studied by Shi et al. [12] is considered. The process parameters are shown in Table 1. The following equations are used to calculate the saturation and metastable concentrations corresponding to the solution temperature, T , as:

$$C_s(T) = 6.29 \times 10^{-2} + 2.46 \times 10^{-3}T - 7.14 \times 10^{-6}T^2 \quad (7)$$

$$C_m(T) = 7.76 \times 10^{-2} + 2.46 \times 10^{-3}T - 8.10 \times 10^{-6}T^2 \quad (8)$$

The distribution of seeded crystals in the batch crystallizer at initial condition was assumed to be a parabolic distribution, which is a function of the crystal characteristic length (r) varying from 250 to 300 μm as:

$$n(r, 0) = \begin{cases} 0.0032(300 - r)(r - 250) & \text{for } 250 \mu\text{m} \leq r \leq 300 \mu\text{m} \\ 0 & \text{for } r < 250 \mu\text{m} \text{ and } r > 300 \mu\text{m} \end{cases} \quad (9)$$

It is noted that the i th moment of the crystal population density at the start of batch run can be determined as:

$$\mu_i(0) = \int_0^\infty r^i n(r, 0) dr \quad (10)$$

Since the crystal breakage or agglomeration was not considered in the proposed crystallizer model, a total number of the crystals growing from seeds, which is determined by the initial seed size distribution, remains constant.

3. Neural network-based optimal control

3.1 Optimal control problem

Considering the practical operation of industrial crystallizers, fine crystals usually cause difficulties in downstream processing equipment and affect both product quality and process economics. For this reason, this work will focus on the development of an optimal control system to achieve a desired final CSD. The control objective is to determine the optimal temperature profile that minimizes the total volume of nucleated fine crystals, which is represented by the third moment of crystals formed by nucleation (μ_3^n), and at the same time maximizes the total volume of the desired crystals growing from seeds (μ_3^s) at the end of batch operation ($t_f = 30$ min). Thus, the optimal control problem takes the form as follows:

$$\underset{T(t)}{\text{Minimize}} \quad \frac{\mu_3^n(t_f)}{\mu_3^s(t_f)} \quad (11)$$

subject to

dynamic crystallizer model

$$30^\circ\text{C} \leq T(t) \leq 50^\circ\text{C}$$

$$C_s \leq C(t) \leq C_m$$

$$\left\| \frac{dT}{dt} \right\| \leq k$$

$$\mu_3^s(t_f) \geq V$$

where the constant k is the maximum gradient of the reactor temperature, which was chosen to be $2^\circ\text{C}/\text{min}$, corresponding to a ability of a cooling control system and V denotes the lower bound on the total volume of the crystals growing from seeded crystals. It is noted that the constraint on $\mu_3^s(t_f)$ indicates a desirable quality of the final crystal product. In this study, the lower bound of $\mu_3^s(t_f)$ was chosen as $8.33 \times 10^9 \mu\text{m}^3 \text{ g solven}^{-1}$.

3.2 Neural network model of batch crystallizer

The first step of implementing NN in an optimal control algorithm is to train the NN to predict the dynamics of the batch crystallizer to be controlled, i.e., the total volume of fine and seeded crystals, when the operating temperature of the crystallizer changes. With the limited availability of actual experimental data, the detailed theoretical model of batch crystallization as mentioned earlier was numerically solved and implemented in Matlab to generate data for NN training. The solution concentration and the total volume of fine and seeded crystals represented by the third moments of crystals (μ_3^n and μ_3^s) as outputs were predicted by using the current values of solution temperature and concentration as inputs since they have a direct effect on the predicted outputs. However, it was found that only the inputs at the current time may not be enough to predict the future outputs. For this reason, the input data consists of the reactor temperatures at time (t), ($t-1$) and ($t-2$) and the solution concentration at time (t) and ($t-1$). Training and validation data sets for NN training were generated by performing various simulations of batch crystallizer operated under random changes in the cooling temperature profile in ranges of 50-30 °C. The operational time was kept constant at 30 min and the sampling time of data was 0.1 min. These data sets were further normalized by Z-score standardization for achieving a good performance of NN model. It is noted that, in general, experimental data are used for NN training; however, with their limited availability for a wide range of operational conditions, the simulated data obtained from numerical simulations of the theoretical crystallizer model were assumed to be used instead.

Fig. 1 shows the detailed training procedure to find the NN model. To train the multilayer feedforward NN, the Levenberg-Marquardt backpropagation algorithm with an early stopping mechanism was used as shown in Fig. 2. Mean square error (MSE) between the NN predicted value and the actual targeted value was used as a criterion for stopping weights and biases adjustment and also for NN selection. From simulation results, the optimum architecture of the NN for the prediction of the solution concentration and the third moment variables consists of three hidden layers with the log-sigmoid transfer function and one output layer with a linear transfer function. The number of nodes in the 1st, 2nd, and 3rd hidden layers are 3, 7 and 5, respectively, as shown in Fig. 3. Table 2 summarizes the MSE value of the NN model with three-hidden layers.

It should be noted that in order to compute the third moments of crystals (μ_3^n and μ_3^s) at the final batch time (t_f), the trained NN model can be recursively employed to predict future outputs over the prediction horizon (n). With the given cooling temperature profile (the value of temperature at each time interval) as shown in Fig. 4, the NN can predict the value of future outputs (i.e., C , μ_3^n and μ_3^s) at time $t+1$. Based on the first output prediction and the current value of temperature, the NN is then recall for the next prediction of the outputs at $t+2$. This step is repeated until the end of batch run; the multiple outputs for n time intervals can be predicted. Fig. 5 compares the predicted values of the solution concentration and the third moment variable obtained from NN and theoretical models.

4. Computational Results

In this section, the optimal control technique based on NN model is implemented to determine an optimal temperature profile for a batch crystallizer. Fig. 6 shows the proposed optimal control structure integrated with NN. The NN was used as a state predictor to predict the values of the solution concentration and the third moment of crystals formed by nucleation (μ_3^n) and seeds (μ_3^s). The optimal control problem as mentioned in Section 3 was numerically solved by a sequential optimization and control approach [14]. In such an approach, the control variable (i.e. crystallizer temperature) is discretized by a piecewise constant function with equally spaced time intervals. This transforms the optimal control problem into a nonlinear programming problem (NLP). In this work, the temperature profile was assumed to be divided into 10 intervals. With the initial guess of the decision variables (the value of temperature at each time interval), the recursive NN is implemented to compute the value of outputs (i.e., C , μ_3^n and μ_3^s) over the prediction horizon as earlier mentioned. Then, the outputs at the final batch time are passed to the optimization solver, which is based on a sequential quadratic programming algorithm, to compute a new temperature profile. These steps are iterative until the optimal temperature profile is found, satisfying the objective function and constraints.

Fig. 7 shows the optimal temperature profile obtained for controlling the batch crystallizer. It is found that the corresponding solution concentration is in the metastable zone of the operation as can be seen in Fig. 8. Table 3 presents the values of μ_3^n and μ_3^s at the final batch time when three

different control strategies: (1) linear cooling control, (2) optimal cooling control based on mathematical model (Shi et al., 2006), and (3) optimal cooling control based on neural network model (this study), were applied to the control of the batch crystallizer. It is noted that for the linear cooling control, the crystallizer temperature is linearly decreased from 50°C to 30°C. Comparing the simulation results, it is clear that the optimal control strategy can yield the lower volume of fine crystals, compared to the linear cooling strategy, while the seeded crystals still satisfy the product quality requirement. The proposed optimal control strategy incorporating the NN model shows good control performance in term of reducing the total volume of fine crystals by 46.53% compared to the linear cooling strategy and by 73.25% compared to the optimal control strategy based on mathematical model.

5. Conclusions

An optimal control based on a neural network model for a batch crystallizer was studied in this work. The optimal control strategy was implemented to find an optimal temperature profile with the aim to minimize a total volume of nucleated fine particles (μ_3^n) and to maximize a total volume of the crystals growing from seeds (μ_3^s) at the end of the operation. The neural network model of batch crystallizer was developed to predict the future process response in terms of the solution concentration and the moment variables that represent a crystal product quality and then employed as a predictor in the optimal control algorithm. It was found that the neural network shows a good state predictor and the optimal control with the neural network model provides a superior control performance compared to a conventional control methodologies.

Acknowledgement

Support from The Thailand Research Fund, Thammasat University Research Fund, Commission on Higher Education, and Chulalongkorn University is gratefully acknowledged.

Nomenclatures

b	nucleation rate exponent
B	nucleation rate, no. crystal $s^{-1} g \text{ solvent}^{-1}$
C	solution concentration, g solute $g \text{ solvent}^{-1}$
C_m	metastable concentration, g solute $g \text{ solvent}^{-1}$
C_s	saturation concentration, g solute $g \text{ solvent}^{-1}$
E	activation energy
n	population density of crystals, no.of crystals $\mu m^{-1} g \text{ solvent}^{-1}$
g	growth rate exponent
G	growth rate, $\mu m s^{-1}$
k_b	birth rate coefficient, $s^{-1} \mu m^{-3}$
k_g	growth rate coefficient, $\mu m s^{-1}$
k_v	volumetric shape factor
r	characteristic crystal length, μm
R	gas constant
t	time, min
T	reactor temperature, $^{\circ}C$

Greek symbols

ρ density of crystals, g μm^{-3}

μ moment variable of crystal size distribution (CSD)

Superscripts

n nucleated crystal

s seeded crystal

References

- [1] P.A. Larsen, D.B. Patience, J.B. Rawlings, Industrial crystallization process and control. IEEE Control Syst. Mag. (2006) 70-80.
- [2] C.B.B. Costa, A.C. Da Costa, R.M. Filho, Mathematical modeling and optimal control strategy development for an adipic acid crystallization process. Chem. Eng. Proc. 44 (2005) 737-753.
- [3] H. Hojjati, S. Rohani, Cooling and seeding effect on supersaturation and final crystal size distribution of ammonium sulphate in a batch crystallizer. Chem. Eng. Proc. 44 (2005) 949-957.
- [4] S.M. Miller, J.B. Rawlings, Model identification and control strategies for batch cooling crystallizers. AIChE. J. 40 (1994) 1312-1327.
- [5] Q. Hu, S. Rohani, A. Jutan, Modeling and optimization of seeded batch crystallizers. Comp. Chem. Eng. 29 (2005) 911-918.
- [6] W. Paengjuntuek, P. Kittisupakorn, A. Arpornwichanop, On-line dynamic optimization integrated with generic model control of a batch crystallizer. J. Ind. Eng. Chem. 14 (2008) 442-448.
- [7] P. Georgieva, S. F. De Azevedo, Application of Feed Forward Neural Networks in Modeling and Control of a Fed-Batch Crystallization Process. Trans on Eng. Comp. and Tech. 12 (2006).
- [8] M.A. Hussain, Review of the application of neural networks in chemical process control-simulation and online implementation. Artificial Intelligence in Engineering. 13 (1999) 55-68.
- [9] F.S. Mjalli, S. Al-Asheh, H.E. Alfadala, Use of artificial neural network black-box modeling for the prediction of wastewater treatment plants performance. J. Env. Manage. 83 (2007) 329-338.
- [10] Z.K. Nagy, Model based control of a yeast fermentation bioreactor using optimally designed artificial neural networks. Chem. Eng. J. 127 (2007) 95-109.
- [11] A. Arpornwichanop, N. Shomchoam, Control of fed-batch bioreactors by a hybrid on-line optimal control strategy and neural network estimator. Neurocomputing. 72 (2009) 2297-2302.
- [12] D. Shi, N.H. El-Farra, M. Li, P. Mhaskar, P.D. Christofides, Predictive Control of Particle Size Distribution in Particulate Processes. Chem. Eng. Sci. 61 (2006) 268-281.

[13] H.B. Matthews, Model identification and control of batch crystallization for an industrial chemical system, PhD thesis, University of Wisconsin at Madison, 1997.

[14] A. Arpornwichanop, N. Shomchoam, Studies on optimal control approach in a fed-batch fermentation. Korean J. Chem. Eng. 24 (2007) 11-15.

List of Tables

Table 1 Model parameters for the seeded batch crystallizer of potassium sulfate

Table 2 MSE of NN with three-hidden layers

Table 3 Performance of batch crystallization under different control strategies

Figure Captures

Fig. 1 Detailed procedure for neural network modeling.

Fig. 2 Training algorithm of feedforward NN.

Fig. 3 Optimum structure of trained NN model.

Fig. 4 Example of Cooling temperature profile.

Fig. 5 Comparison of simulation results obtained from NN and theoretical model: (a) solution concentration (b) μ_3^n and (c) μ_3^s

Fig. 6 Optimal control incorporating with NN model predictor.

Fig. 7 Optimal cooling temperature profile.

Fig. 8 Concentration profile under the optimal operation of batch crystallizer.

Table 1 Model parameters for the seeded batch crystallizer of potassium sulfate

$b = 1.45$	$g = 1.5$
$k_b = 285 \text{ s}^{-1} \mu\text{m}^{-3}$	$k_g = 1.44 \times 10^8 \mu\text{m s}^{-1}$
$E_b/R = 7,517 \text{ K}$	$E_g/R = 4,859 \text{ K}$
$k_v = 1.5$	$C(t = 0) = 0.1742 \text{ g solute g solvent}^{-1}$
$\rho = 2.66 \times 10^{-12} \text{ g } \mu\text{m}^{-3}$	$t_f = 30 \text{ min}$

Table 2 MSE of NN with three-hidden layers

Number of Nodes			Mean Square Error
1 st Hidden Layer	2 nd Hidden Layer	3 rd Hidden Layer	(MSE) [$\times 10^{-4}$]
3	3	3	293.646
		5	5.8851
		7	6.3296
		9	26.6982
	5	3	6.2416
		5	248.198
		7	6.3224
		9	6.9727
	7	3	6.4698
		5	5.3558
		7	6.6531
		9	6.7970
	9	3	6.5793
		5	6.3281
		7	5.6535
		9	6.4608

Table 3 Performance of batch crystallization under different control strategies

Control Strategies	$\mu_3^n(t_f)$	$\mu_3^s(t_f)$
Linear cooling control	8.917×10^9	9.1121×10^9
Optimal control based on theoretical crystallization model	1.7828×10^9	1.0545×10^{10}
Optimal control based on NN model	4.7681×10^8	9.6841×10^9

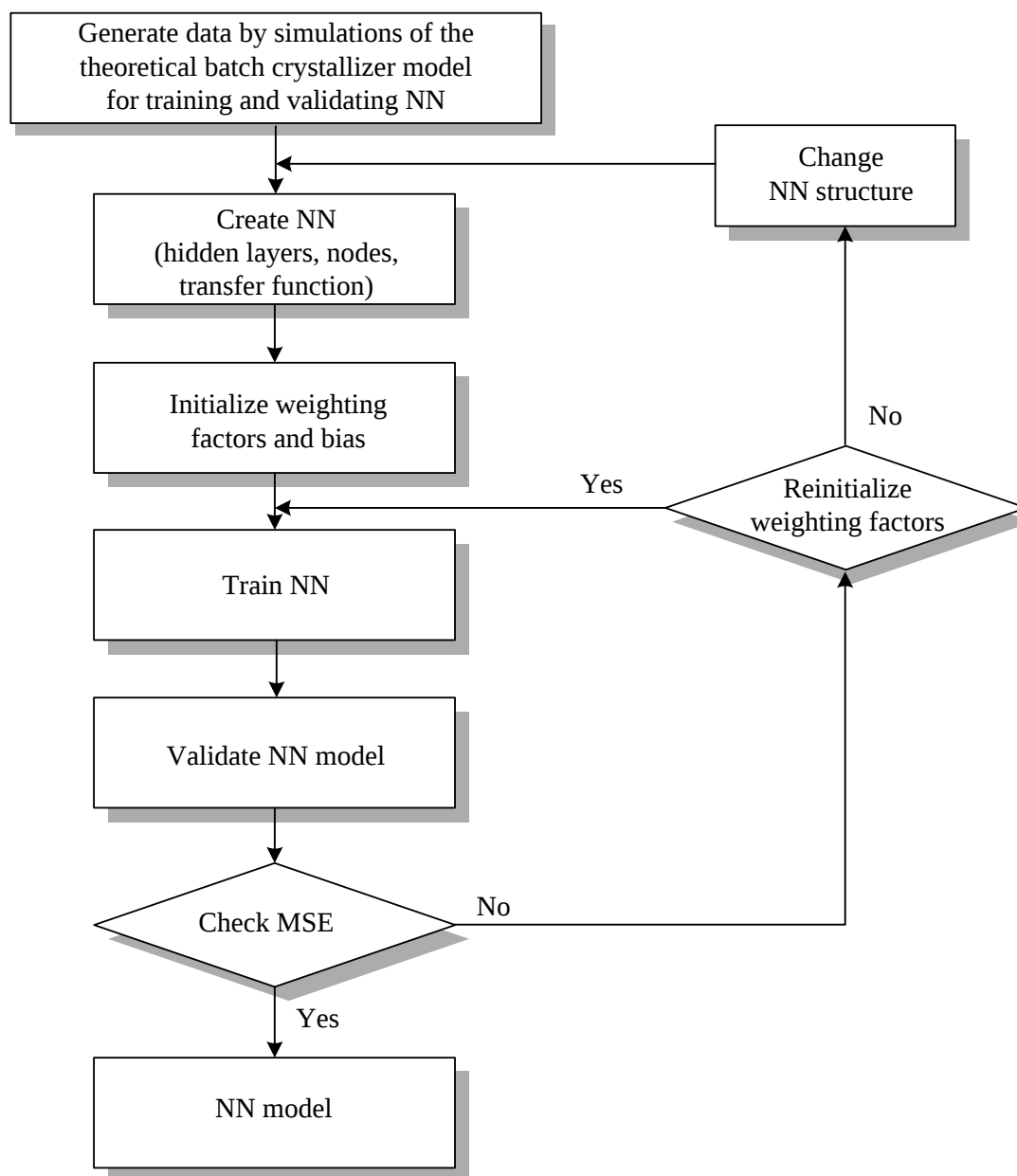


Fig. 1 Detailed procedure for neural network modeling.

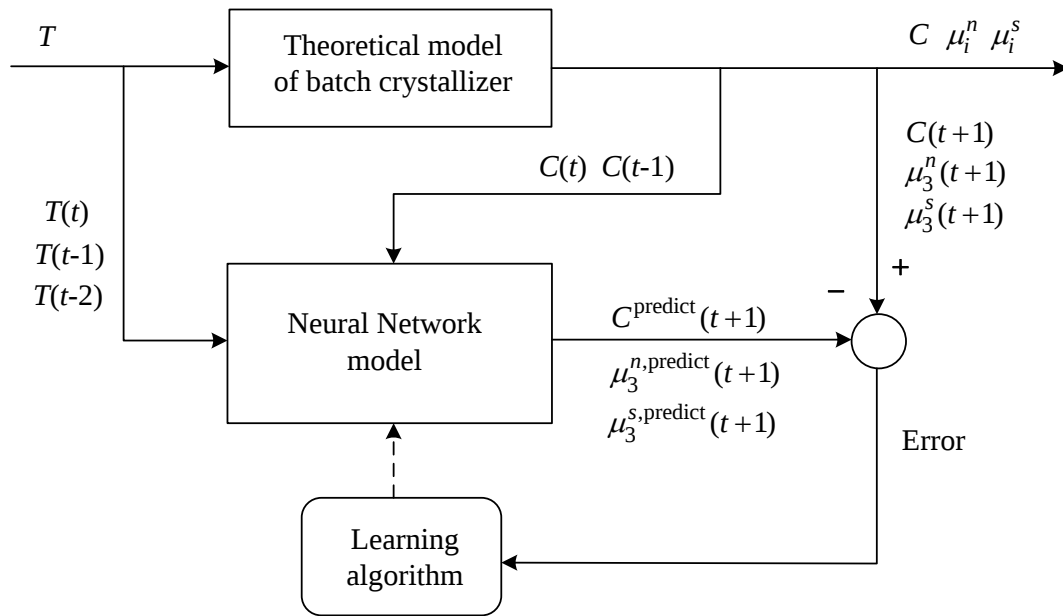


Fig. 2 Training algorithm of feedforward NN.

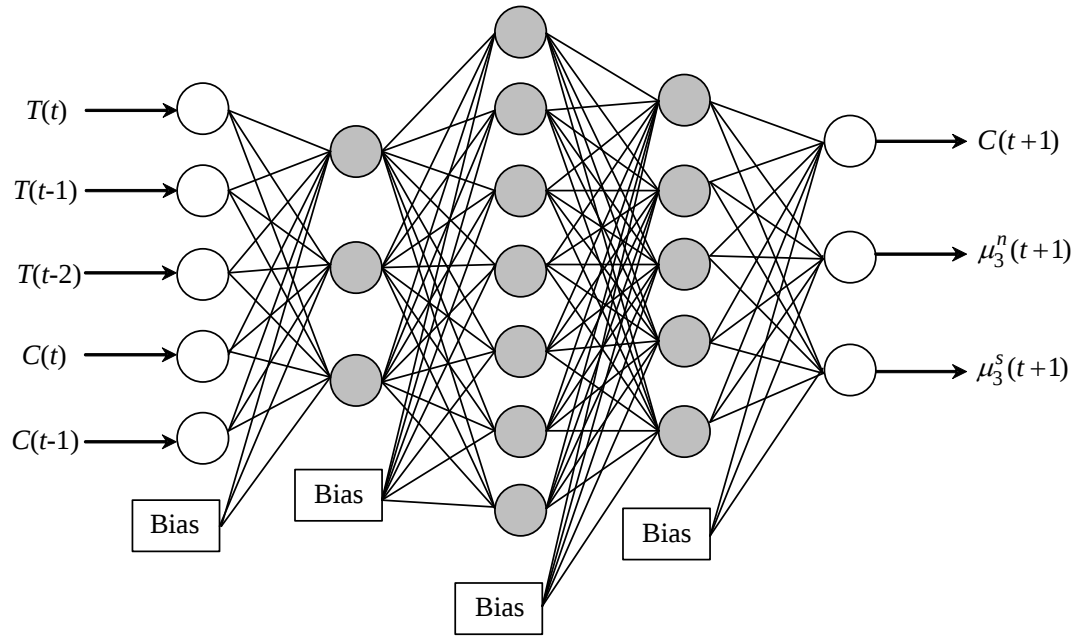


Fig. 3 Optimum structure of trained NN model.

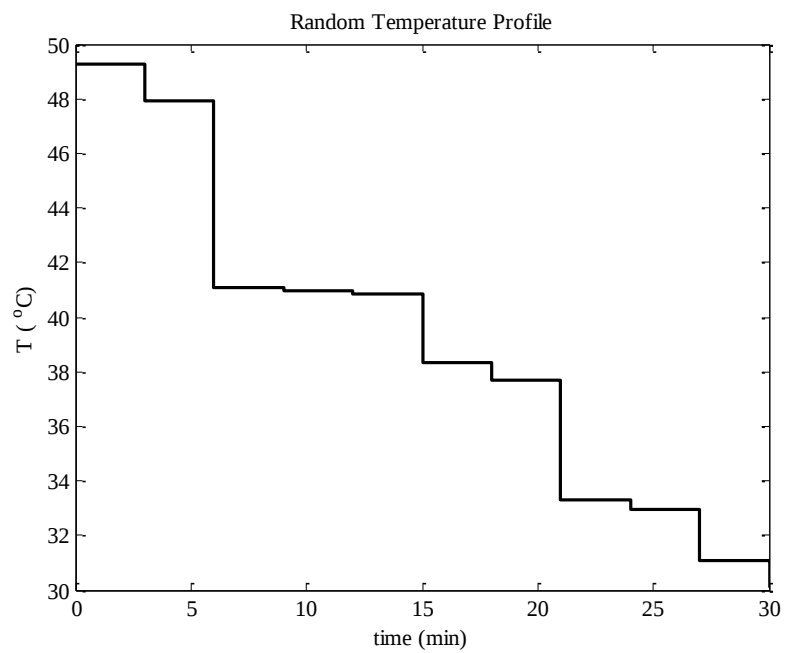
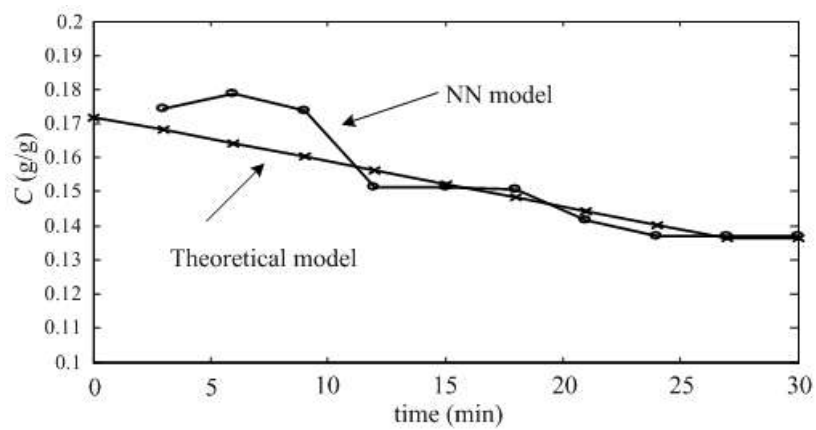
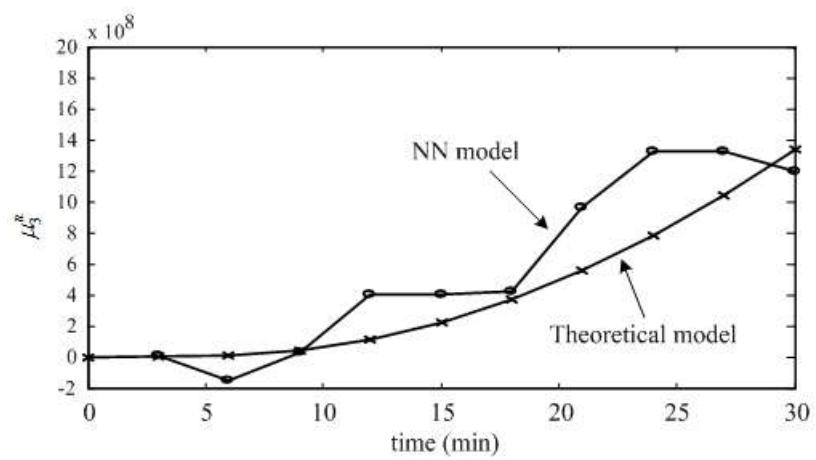


Fig. 4 Example of cooling temperature profile.

(a)



(b)



(c)

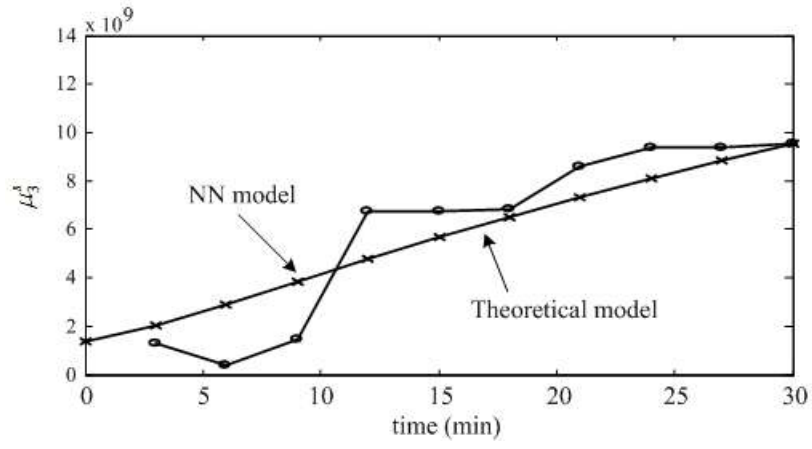


Fig. 5 Comparison of simulation results obtained from NN and theoretical model: (a) concentration profile (b) μ_3^n profile and (c) μ_3^s profile

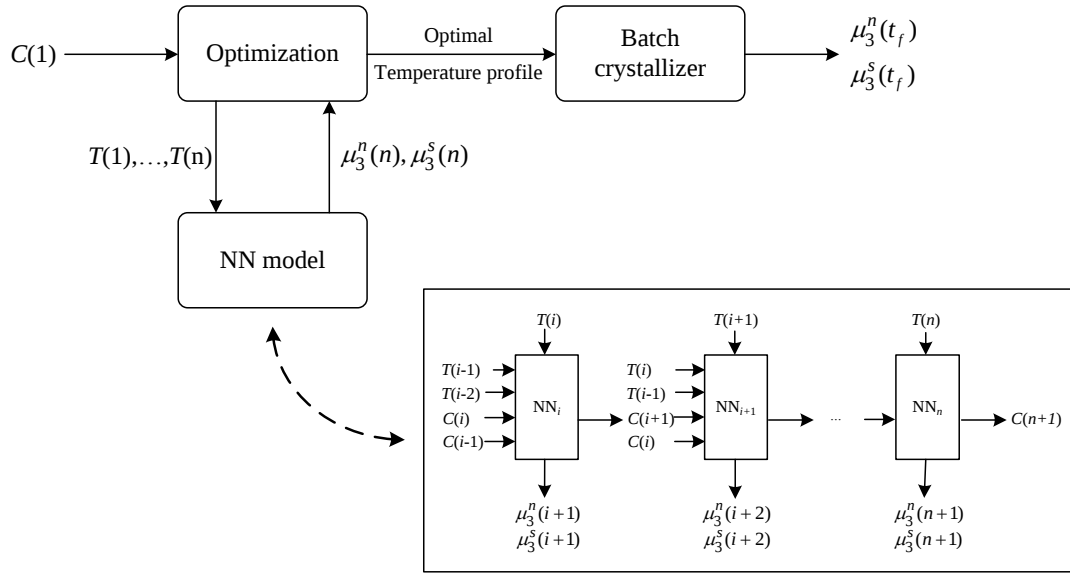


Fig. 6 Optimal control incorporating with NN model predictor.

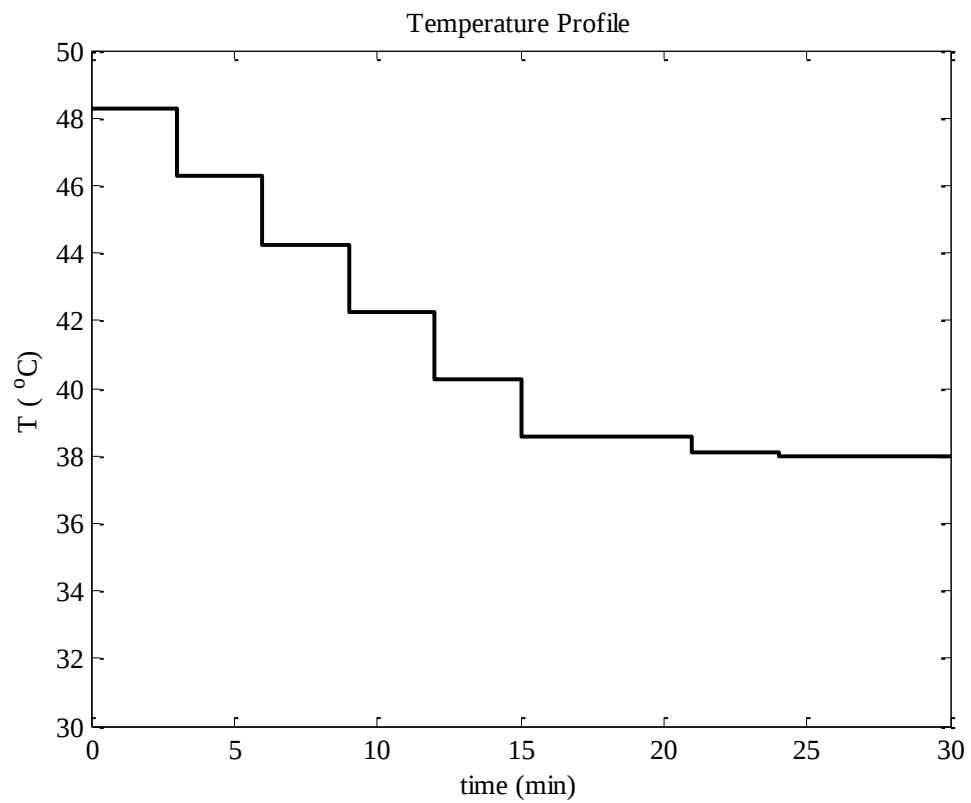


Fig. 7 Optimal cooling temperature profile.

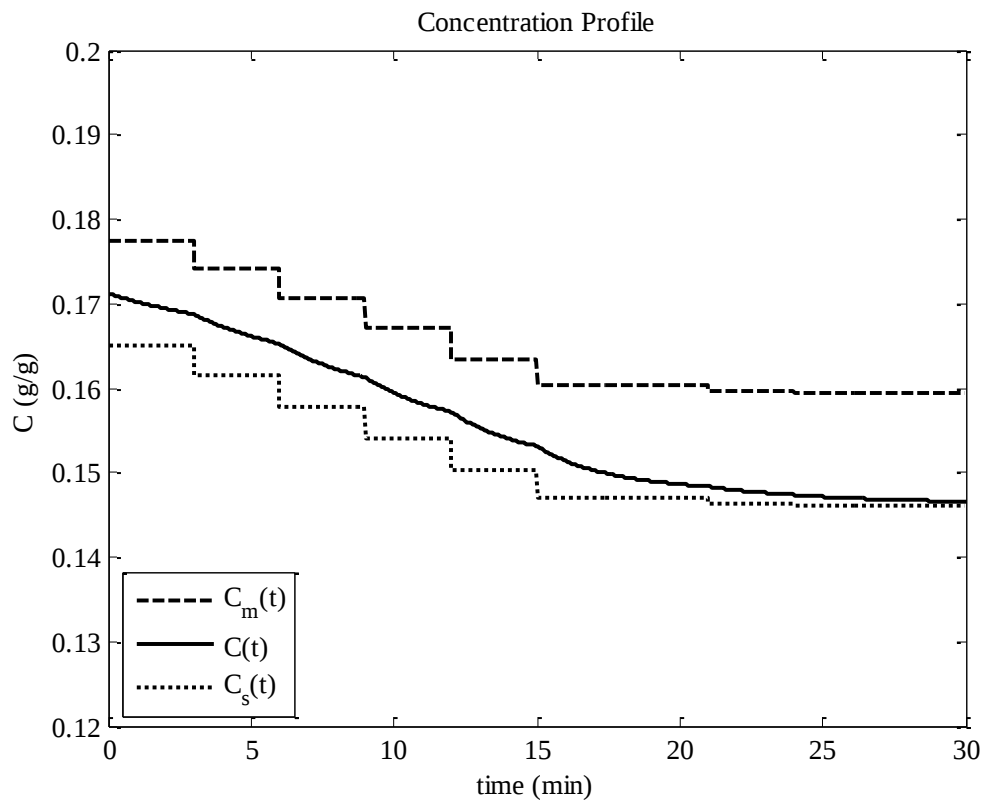


Fig. 8 Concentration profile under the optimal operation of batch crystallizer.

ภาคผนวก ข

**Improving the performance of a crystallization process by a semi-
batch operation mode**

(accepted for publication in Korean Journal of Chemical Engineering)

Improving the performance of a crystallization process by a semi-batch operation mode

Woranee Paengjuntuek^{*,a} and Amornchai Arpornwichanop^b

^aDepartment of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Thammasat University, Pathumthani
12120, Thailand

^bDepartment of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Chulalongkorn University,
Bangkok 10330, Thailand

Abstract

In a crystallization process, a driving force in a crystal formation is the nonequilibrium state of the system measured by a relative supersaturation. For cooling crystallization, the supersaturation is associated with the operating temperature and solute concentration. On the basis of the phenomena, a semi-batch operation is proposed for improving the process performance since these parameters are taken into account as controlled variables. A dynamic optimization approach is used to determine optimal operating conditions in terms of temperature and solvent feed rate profiles that optimize a chosen product quality. Simulation study on unseeded and seeded cooling crystallizations of potassium sulfate as a case study is presented. The results are compared with batch cooling crystallization.

Introduction

In the early states of chemical engineering, finding an adequate process for every desired product was the main purpose. Nowadays, the goal has changed in order to enable competitiveness. The process design is not only sufficient to manufacture a desired product, but also to provide the desired product properties with respect to a production economic.

Crystallization is one of the oldest chemical engineering processes widely used in chemical, mineral, and pharmaceutical industries for separation and purification. The main advantages of crystallization are a high purity in one step, a low level of energy consumption and relatively mild process conditions. The crystal product qualities are usually measured in terms of the crystal size distribution (CSD) or properties related to it; there are the mean crystal size, the size of seeded crystals, the variance of the product CSD, the nucleated crystal mass and the seeded crystal mass etc [1].

Crystallization can generally be operated in continuous and batch modes. Continuous operation is often regarded as the ideal procedure for many processes; however, it is not always true for crystallization processes. Batch operation often offers considerable advantages, such as simplicity of equipment and minimization of product losses. In many cases, only a batch crystallizer can produce the required crystal form, size distribution, or purity as a batch crystallizer can produce a narrow crystal size distribution (CSD) and a large mean crystal size product. On the other hand, the main advantage of a continuous operation is that it achieves a higher yield than a batch operation. Additionally, the control of temperature, supersaturation, and all other parameters that influence CSD is less complicated [2]. From this aspect, combining the best features of both batch and continuous operations; therefore, a semi-batch operation mode is applied resulting in higher production yield than normal batch operation.

There has received widespread attention on the design and analysis of semi-batch crystallization through simulation and experimentation. Vu et al. [2] studied the cooling batch, cooling and evaporative semi-batch crystallization process producing α -lactose monohydrate. The optimization problem is formulated to find the optimal set point profile. Mandare and Pangarar [3] studied the effect of mixing parameters and reactant concentrations on the average crystal size in semi-batch reactive crystallization of potassium perborate tetrahydrate. Choong and Smith [4]

proposed deterministic optimization methodologies implemented on batch, semi-batch and non-isothermal evaporative crystallizations of citric-water system. Choong and Smith [5] simulated the semi-batch reactive crystallization processes. The optimization approach is used to determine the initial amount of the reactant, feed addition profiles and addition time. The objective is maximizing the crystal size and minimizing the coefficient of variation. Goncalves et al. [6] studied and compared the performance of batch and semi-batch reactive crystallization under optimal operational conditions of amoxicillin enzymic synthesis. Kim et al. [7] studied the effect of operating conditions including feed concentration, temperature and the presence of seeds with varying seed mass on the crystallization of L-ornithine-L-aspartate (LOLA) by drowning out.

Compared with semi-batch reactive and evaporative crystallizations, semi-batch cooling crystallization has received rather little attention in the research on process modeling and optimization. This is due to the fact that some reaction is instantaneous, which leads to spontaneous production of a large number of crystals. Hence, to avoid a sudden surge of a solute concentration leading to the production of a large number of small crystals, semi-batch operation is becoming more attractive. Additionally, for evaporative crystallization, semi-batch operation achieves a high crystal product yield with a large crystal size [5]. Of the various types of crystallization; however, cooling crystallization is one of the most common processes widely used in many industries for a system that the solubility increases strongly dependent with temperature. Hence, finding a strategy that improves such a crystallization performance is an important issue. Since the driving force in the formation of a crystal is the nonequilibrium state of the system measured by a relative supersaturation. For cooling crystallization, the supersaturation is associated with the solute concentration and temperature. On the basis of the phenomena, taking these parameters into account as controlled variables, product quality and process efficiency should be improved.

In this study, the performance of semi-batch cooling crystallization is investigated and compared with a batch operation. A dynamic optimization approach is used to determine optimal operating conditions that optimize a chosen product quality. The cooling crystallization of potassium sulfate as a case study is evaluated via simulation.

Mathematical model of a semi-batch crystallization process

The classical framework for modeling crystallization consists of population balance equation (PBE), which is a conservation equation for the number of crystals in a population. Assuming that the crystallizer is well-mixed, crystal breakage and agglomeration are negligible; the PBE with a characteristic length L can be described as

$$\frac{\partial f(L,t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial f(L,t)}{\partial L} + f \frac{d(\ln M)}{dt} = 0 \quad (1)$$

The mass balance of the solute per unit mass of solvent:

$$\frac{dC}{dt} = -3\rho_c k_v G(t) \int_0^\infty L^2 f(L,t) dL - C(t) \frac{d(\ln M)}{dt} + \frac{F_s(t)}{M(t)} \quad (2)$$

The mass balance of solvent in the semi-batch crystallizer:

$$\frac{dM}{dt} = F(t) \quad (3)$$

where f is the population density of crystals, ρ_c is the crystal density, k_v is the volume shape factor, G is the growth rate, F is the solvent feed rate and F_s is the solute feed rate determined by $F_s = F(t)C(0)$. In batch crystallization, $F(t) = 0$ and $dM/dt = 0$.

The kinetic phenomena that influence the formation of crystals are nucleation and growth. The driving force for both phenomena is the nonequilibrium state of the system measured by a relative supersaturation (S).

$$S = \frac{C - C_s(T)}{C_s(T)} \quad (4)$$

The modeling of nucleation and growth are usually simplified by assuming an empirical functional form as given in Eqs. (5) and (6).

$$B(t) = k_b \exp(-E_b / RT) S^b \int_0^\infty f(L,t) L^3(t) dL \quad (5)$$

$$G(t) = k_g \exp(-E_g / RT) S^g \quad (6)$$

The solution of the model equations of a crystallization process, which consists of the population (Eq. 1), and the mass balance equations (Eqs. 2-3), is performed using the methodology proposed by Hu et al. [8]. Based on concept of the conservation of a numbers of crystals, the PBE is transformed by a finite difference method to a set of algebraic equations and is solved with the mass balances.

In this work, the cooling crystallization of potassium sulfate as a case study is considered. The physical parameters of the crystallizer are shown in Table 1. The following equations are used to calculate the saturation and metastable concentrations corresponding to the solution temperature, T [9].

$$C_s(T) = 6.29 \times 10^{-2} + 2.46 \times 10^{-3}T - 7.14 \times 10^{-6}T^2 \quad (7)$$

$$C_m(T) = 7.76 \times 10^{-2} + 2.46 \times 10^{-3}T - 8.10 \times 10^{-6}T^2 \quad (8)$$

The metastable zone specifies the default region of solution concentration (C) for process to be operated in order to avoid spontaneous nucleation resulting in excessive fine crystals and undesirable product quality. This region is bounded by the solubility curve and the metastable limit, $C_s \leq C \leq C_m$.

In the case of seeded crystallization, the initial distribution of the seeded crystals is assumed to be a parabolic distribution as the function of the crystal characteristic length ranging from 250 to 300 μm [9].

$$f_{seed}(L, 0) = \begin{cases} 0.0032(300 - L)(L - 250) & \text{for } 250\mu\text{m} \leq L \leq 300\mu\text{m} \\ 0 & \text{for } L < 250\mu\text{m} \text{ and } L > 300\mu\text{m} \end{cases} \quad (9)$$

Dynamic optimization strategy

The purpose of a dynamic optimization is to determine control trajectories that optimize a performance index. For unseeded process, the important product property is that a large number of the crystal yield with a large crystal volume. On the other hand, when seeding is necessary because of the specification on crystal product size, a large volume of seeded crystals favors

product quality. However, fine crystals obtained from nucleation should be kept in possible lower limit as they may cause difficulties in downstream operations e.g. filtration and drying.

In regard to its infinite-dimensional nature, the direct use of PBE in optimization and design of controllers should be avoided [9]. Recently, the development in the method of moments leads to reduced order models in which the key dynamics of crystallization processes is taken into account. Following this approach, the PBE is transformed to a set of ordinary differential equations (ODEs). In principle, the method of moments defines the i th moment in terms of the population density function by

$$\mu_i = \int_0^{\infty} f(L,t) L^i(t) dL \quad (10)$$

The rate equation of moments is derived by determining separately the moments of the fine and seeded classes for the CSD as in Eqs. (11) and (12),

$$\begin{aligned} \frac{d\mu_0^n}{dt} &= B(t), \\ \frac{d\mu_i^n}{dt} &= iG(t)\mu_{i-1}^n(t), \quad i = 1, 2, 3 \end{aligned} \quad (11)$$

For unseeded process,

$$\mu_i^s = 0, \quad i = 0, 1, 2, 3 \quad (12a)$$

For seeded process,

$$\begin{aligned} \mu_0^s &= \text{constant}, \\ \frac{d\mu_i^s}{dt} &= iG(t)\mu_{i-1}^s(t), \quad i = 1, 2, 3 \end{aligned} \quad (12b)$$

the overall i th moments are defined as $\mu_i = \mu_i^n + \mu_i^s$. It is noted that since the crystal breakage or agglomeration model was not considered in the proposed crystallizer model, a total number of the crystals growing from seeds remains constant which is determined by the initial seed size distribution.

The dynamic optimization can be stated mathematically as follows

For unseeded process:

$$\min_{T(t), F(t)} -(\mu_0^n(t_f) + \mu_3^n(t_f)) \quad (13)$$

subject to

the crystallizer model equations: Eqs. (2), (3), (11) and (12a)

$$C_s \leq C \leq C_m$$

$$T_{\min} \leq T \leq T_{\max}$$

For seeded process:

$$\min_{T(t), F(t)} \mu_3^n(t_f) \quad (14)$$

subject to

the crystallizer model equations: Eqs. (2), (3), (11) and (12b)

$$C_s \leq C \leq C_m$$

$$T_{\min} \leq T \leq T_{\max}$$

$$\mu_3^s(t_f) \geq 8.3301 \times 10^9$$

where $T_{\min}$ and $T_{\max}$ is chosen as 303 and 323 K, respectively, and the final batch time, t_f , is 30 min. Even though, the optimal profiles are designed based on moments model, in which the PBE is not directly calculated. However, the measurable CSD can be represented in terms of the i th moments; the physical meanings of the i th moments are total crystal number (μ_0), total crystal length (μ_1), total crystal surface area (μ_2), total crystal volume (μ_3).

In this study, a sequential optimization method in which the dynamic optimization is transformed into a nonlinear programming problem is employed to solve the formulated dynamic optimization problem. The nonlinear programming problem is solved by a sequential quadratic programming (SQP) method using the fmincon routine in Matlab optimization toolbox in order to

compute a new set of the temperature and solvent feed rate in each time interval. This procedure is repeated until the optimal profiles are found. It is noted for batch crystallizer that the crystallizer temperature is only an optimized variable.

Simulation results

First, simulation studies are investigated in unseeded crystallization process where seeding is inappropriate due to the strict purity restrictions such as pharmaceutical compounds. The operation goal is to maximize the crystal yield with a large crystal volume as stated in Eq. (13). The optimal control profiles for semi-batch and batch cooling crystallization processes are shown in Fig. 1 and 2, respectively. The comparison of the supersaturation is illustrated in Fig.3. Since the supersaturation is the main process driving force, the high level of the supersaturation results in high nucleation and growth rates. The corresponding crystal size distribution (CSD) at final batch time is given in Fig. 4. It can be seen from the figure that the semi-batch operation offers advantage as it allows more product yield and large crystal volume. Table 2 demonstrates the crystal product qualities in different operation modes. It is evident that the performance of semi-batch operation is better than the batch operation as it provides the superior crystal qualities.

On the other hand, in seeded crystallization process the seeded crystals growing from initial seeded are considered as the product while fine crystals have to be removed because they affect product quality and also process economic. Hence, the purpose of operation is to find the optimal operating profile that can produce the crystal product specifying the desired quality (in terms of total volume of seeded crystals, μ_3^s) whereas the fine crystals (μ_3^n) have to be minimized as stated in Eq. (14).

In case of the same amount of solvent in semi-batch and batch reactors, the optimal operating profiles are illustrated in Fig. 5 and 6. The crystal size distribution from Fig. 7 is characterized by the classes of nucleated and seeded crystals. The final crystal product qualities are given in Table 3. The results demonstrate that the semi-batch operation produces larger crystal volume and greater total number of crystals compared with the batch operation mode. It is evident that the semi-batch operation achieves a higher crystal yield than batch operation. Even though,

the seeded crystal product is larger, a large number of fine crystals is produced which does not favor desired quality in seeded process.

On the basis of the result, if the customer specification of crystal product is restricted in the desired size of seeded crystals ($\mu_3^s \approx 8.3380 \times 10^9$), the semi-batch operation can produce the crystals with the desired size using the lower amount of solvent use or a smaller crystallizer volume. On condition that using the same amount of solvent use, the semi-batch operation requires a shorter operation time compared with batch mode. The results are shown in Table 4. From these results, it is clearly indicated that the performance of the both unseeded and seeded cooling crystallization processes can be improved by semi-batch operation.

Conclusion

The aim of this work is to improve the performance of cooling crystallization. A semi-batch operation is proposed for producing the superior product quality. A dynamic optimization approach is used to determine optimal operating conditions that optimize a chosen product requirement. The results are investigated in two cases: unseeded and seeded processes. In unseeded crystallization, the simulation results demonstrate that the performance of semi-batch operation is better than the batch operation as it can provide more product yield and large crystal volume, which favor the quality requirement. Furthermore, in the case of seeded process, the results of the same amount of solvent use show that the semi-batch operation can produce larger crystal volume and greater total number of crystals. However, a large number of fine crystals is produced which does not favor desired quality in seeded process. On the other hand, in the case of restriction on the seeded crystal size, the semi-batch operation can produce the crystals with the desired size using the lower amount of solvent use. On condition that using the same amount of solvent use, the semi-batch operation requires a shorter operation time. From these results, it is clearly indicated that the performance of the both unseeded and seeded cooling crystallization processes can be improved by semi-batch operation.

Acknowledgement

The authors would like to acknowledge the support from The Thailand Research Fund (TRF).

Nomenclature

b	nucleation rate exponent
B	nucleation rate (no. of crystals $s^{-1} g \text{ solvent}^{-1}$)
C	solution concentration ($g \text{ solute } g \text{ solvent}^{-1}$)
C_m	metastable concentration ($g \text{ solute } g \text{ solvent}^{-1}$)
C_s	saturation concentration ($g \text{ solute } g \text{ solvent}^{-1}$)
E	activation energy
f	population density of crystals (no. of crystals $s^{-1} \mu m^{-1} g \text{ solvent}^{-1}$)
F	the solvent feed rate
F_s	the solute feed rate
g	growth rate exponent
G	growth rate ($\mu m s^{-1}$)
k_b	birth rate coefficient ($s^{-1} \mu m^{-3}$)
k_g	growth rate coefficient ($\mu m s^{-1}$)
k_v	volumetric shape factor
L	characteristic crystal length (μm)
M	mass of solvent in the crystallizer (kg)

R	gas constant
t	time (min)
T	reactor temperature (K)

Greek symbols

ρ_c	density of crystals ($\text{g } \mu\text{m}^{-3}$)
μ_i	i th moment of the CSD
μ_0	zeroth moment of the CSD (no. of crystals g solvent^{-1})
μ_1	first moment of the CSD ($\mu\text{m } \text{g solvent}^{-1}$)
μ_2	second moment of the CSD ($\mu\text{m}^2 \text{ g solvent}^{-1}$)
μ_3	third moment of the CSD ($\mu\text{m}^3 \text{ g solvent}^{-1}$)

Superscripts

n	nucleated (fine) crystal
s	seeded crystal

Reference

- [1] D. Sarkar, S. Rohani, A. Jutan, Multi-objective optimization of seeded batch crystallization processes, *Chem. Eng. Sci.* 61 (2006) 5282-5295.
- [2] T. T. Vu, R. J. Durham, J. A. Hourigan, R. W. Sleight, Dynamic modeling optimization and control of lactose crystallization: Comparison of process alternatives, *Separation and Purification Tech.* 48 (2006) 159-166.
- [3] P. N. Mandare, V. G. Pangarkar, Semi-batch reactive crystallization of sodium perborate tetrahydrate: effect of mixing parameters on crystal size, *Chem. Eng. Sci.* 58 (2003) 1125-1133.
- [4] K. L. Choong, R. Smith, Novel strategies for optimization of batch, semi-batch and heating/cooling evaporative crystallization, *Chem. Eng. Sci.* 59 (2004) 329-343.
- [5] K. L. Choong, R. Smith, Optimization of semi-batch reactive crystallization processes, *Chem. Eng. Sci.* 59 (2004) 1529-1540.
- [6] L. R. Goncalves, R. L. Giordano, R. C. Giordano, Mathematical modeling of batch and semibatch reactors for the enzymic synthesis of amoxicillin, *Process Biochem.* 40 (2005) 247-256.
- [7] Y. Kim, W. Hyung, S. Haam, Y. G. Shul, K. Koo, The effect of initial precipitates on the induction period of L-ornithine-L-aspartate during semi-batch drowning out crystallization, *J. of Crystal Growth* 289 (2006) 236-244.
- [8] Q. Hu, S. Rohani, A. Jutan, Modeling and optimization of seeded batch crystallizers, *Comp. Chem. Eng.* 29 (2005) 911-918.
- [9] D. Shi, N. H. El-Farra, M. Li, P. Mhaskar, P. D. Christofides, Predictive control of particle size distribution in particulate processes, *Chem. Eng. Sci.* 61 (2006) 268-281.

Table 1 The physical parameters of the cooling crystallizer

Parameters	Value	Parameters	Value
b	1.45	g	1.5
k_b	$285.0 \text{ 1/(s}\cdot\mu\text{m}^3)$	k_g	$1.44\times 10^8 \text{ }\mu\text{m/s}$
E_b/R	7,517.0 K	E_g/R	4,859.0 K
M	27.0 kg	ρ_c	$2.66\times 10^{-12} \text{ g/}\mu\text{m}^3$
k_v	1.5	t_f	30.0 min
$C(0)$	0.1743 g solute/g solvent	$T(0)$	323 K

Table 2 Comparison of the crystal quality in different operation modes

Unseeded Crystallization	$\mu_0^n(t_f)$ (no. of crystal g solvent ⁻¹)	$\mu_3^n(t_f)$ (μm^3 g solvent ⁻¹)
Semi-batch process	1,235	5.4739×10^9
Batch process	620	1.6921×10^9

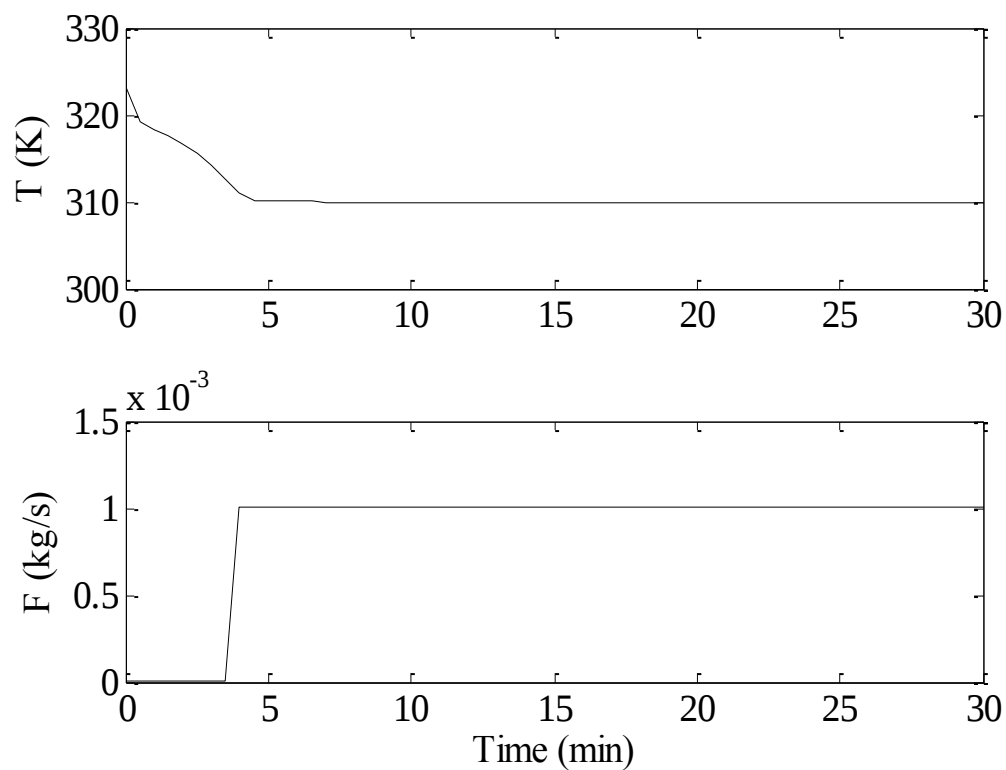
Table 3 Comparison of the crystal quality in case of the same amount of solvent (M = 27.0 kg)

Seeded Crystallization	$\mu_0^n(t_f)$	$\mu_3^n(t_f)$	$\mu_3^s(t_f)$
Semi-batch process	470	7.0039×10^8	8.7903×10^9
Batch process	365	6.6436×10^8	8.3380×10^9

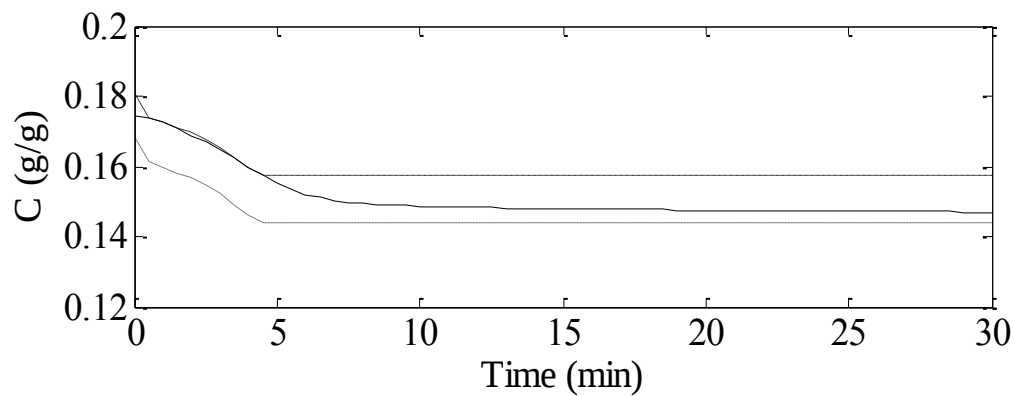
Note that in this study, a total number of seeded crystals, $\mu_0^s(t_f)$, is constant.

Table 4 The crystal quality in case of restriction on the seeded crystal quality

Seeded Crystallization		$\mu_3^n(t_f)$	$\mu_3^s(t_f)$
At $t_f = 30.0$ min	M = 25.36 kg	5.8719×10^8	8.3381×10^9
At M = 27.0 kg	$t_f = 17.0$ min	4.2899×10^8	8.3376×10^9

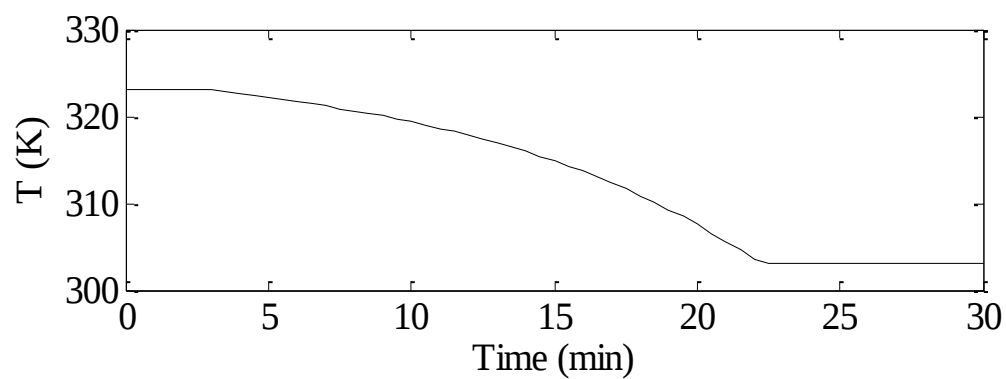


(a)

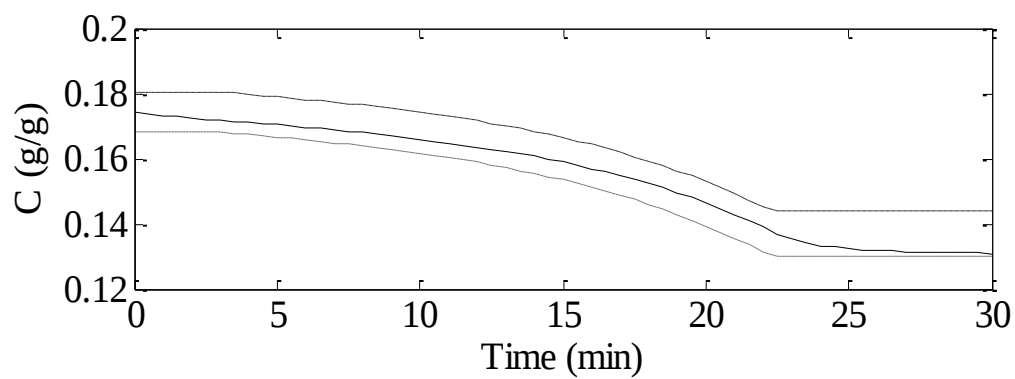


(b)

Fig. 1 (a) The optimal temperature and solvent feed rate profiles, and (b) the concentration profile (C_s : dotted, C : solid, C_m : dash) on the unseeded semi-batch crystallization process.



(a)



(b)

Fig. 2 (a) The optimal temperature profile, and (b) the concentration profile (C_s : dotted, C : solid, C_m : dash) on the unseeded batch crystallization process.

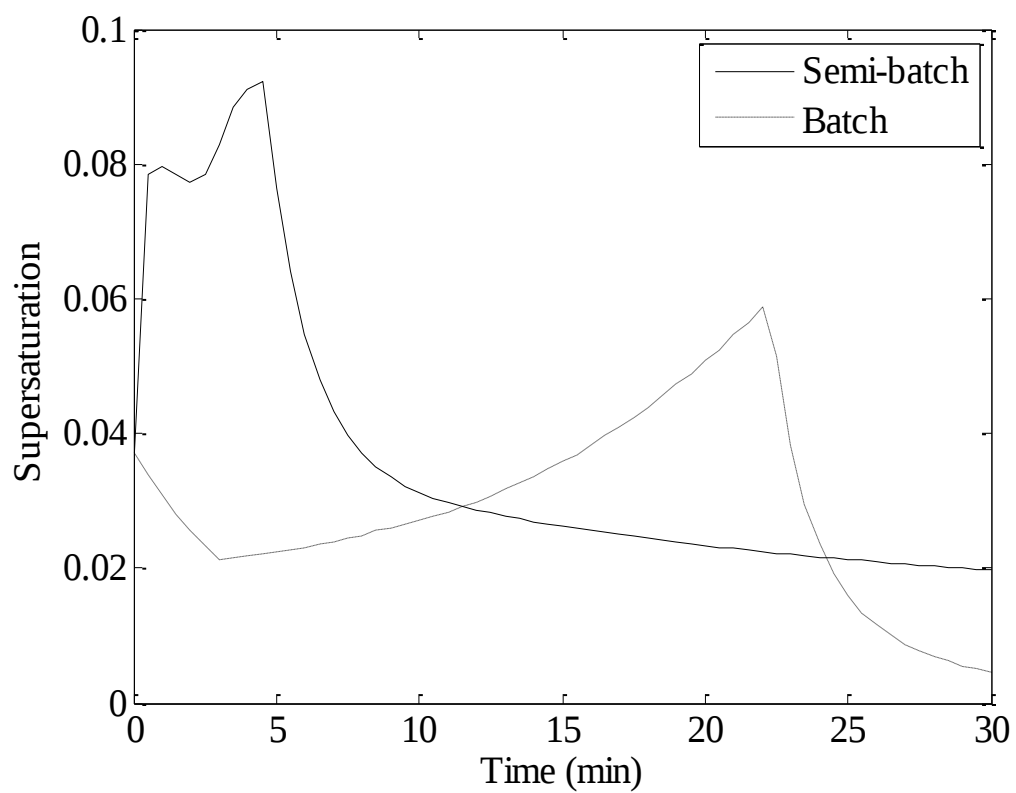


Fig. 3 Supersaturation profile on unseeded crystallization processes.

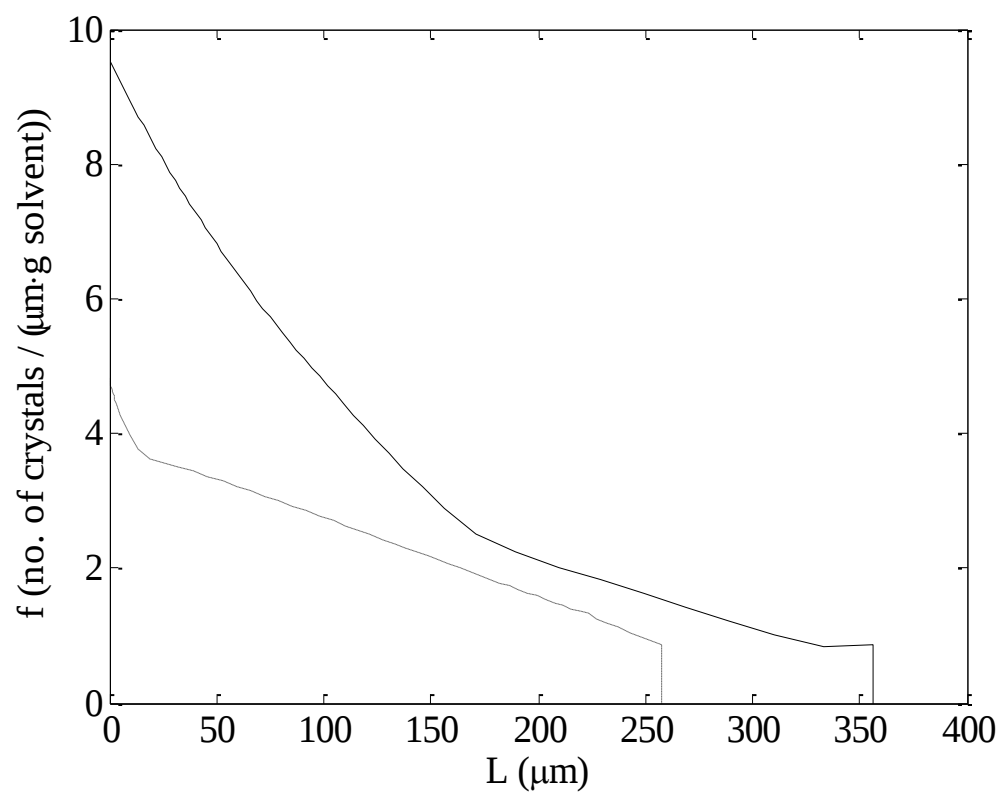
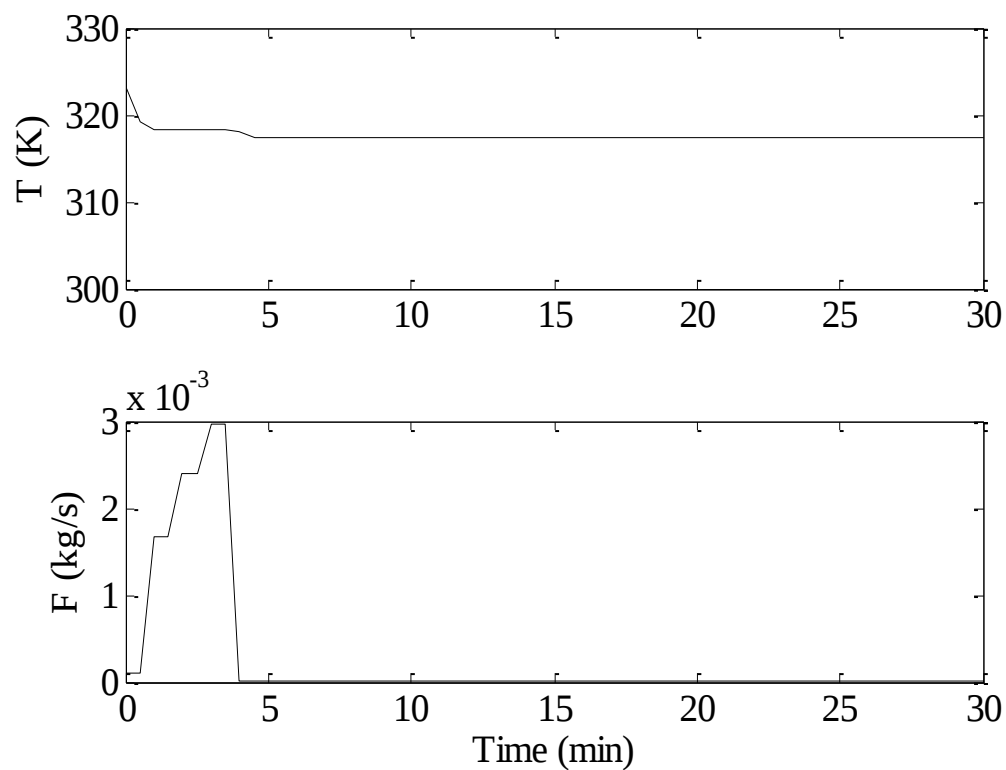
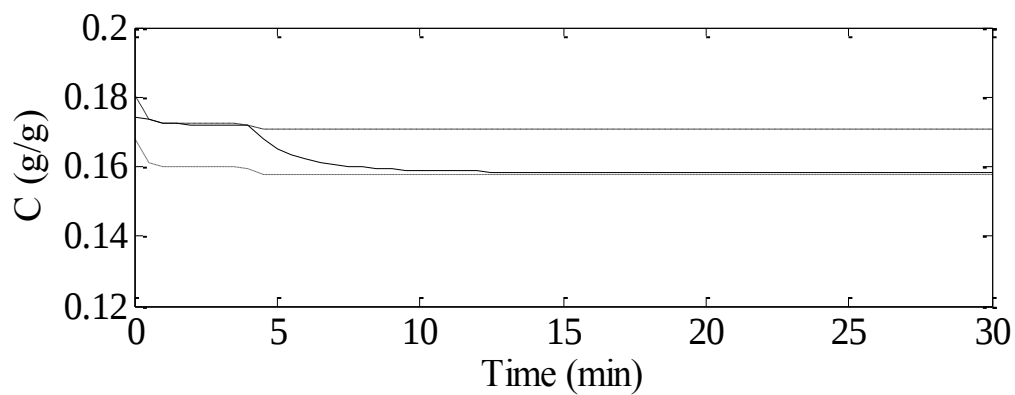


Fig. 4 Comparison of the CSD on unseeded semi-batch and batch crystallization processes.

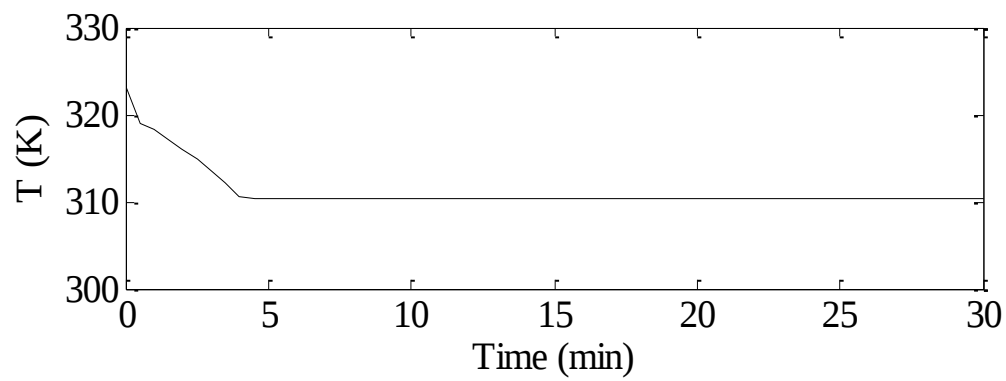


(a)

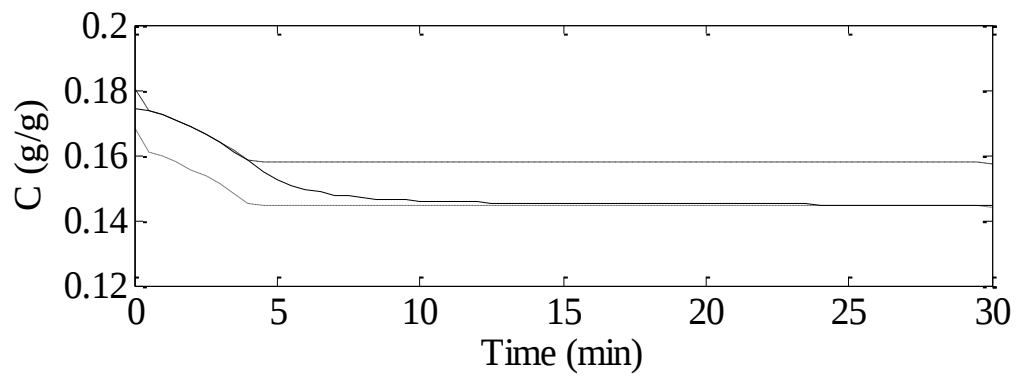


(b)

Fig. 5 (a) The optimal temperature and solvent feed rate profiles, and (b) the concentration profile (C_s : dotted, C : solid, C_m : dash) on the seeded semi-batch crystallization process.



(a)



(b)

Fig. 6 (a) The optimal temperature profile, and (b) the concentration profile (C_s : dotted, C : solid, C_m : dash) on the seeded batch crystallization process.

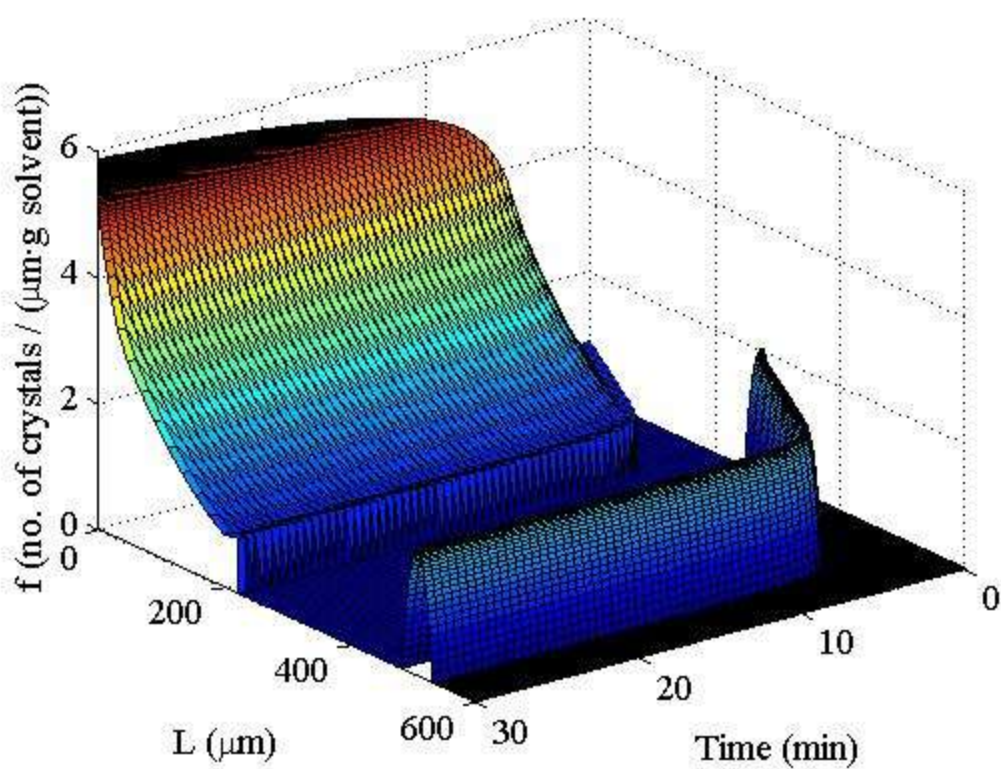


Fig. 7 The evolution of crystal size distribution on the seeded semi-batch crystallization processes.

ภาคผนวก ค

Optimization study of cooling crystallization performance

(17th Regional Symposium on Chemical Engineering, RSCE2010,
22nd – 23rd November 2010, Bangkok, Thailand)

Optimization study of cooling crystallization performance

Woranee Paengjuntuek^{*},¹ and Amornchai Arpornwichanop²

¹ Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering,

Thammasat University, Patumthani, 12120, Thailand

² Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering,

Chulalongkorn University, Bangkok, 10330, Thailand

*e-mail: pworanee@engr.tu.ac.th

Abstract

For cooling crystallization, the supersaturation a driving force in a crystal formation is associated with the operating temperature and solute concentration. On the basis of the phenomena, a semi-batch operation is proposed for improving the process performance since these parameters is taken into account as controlled variables. In this work, a dynamic optimization approach is used to determined optimal operating conditions in terms of temperature and solvent feed rate profiles that optimize a chosen product quality. The results revealed that the performance of the seeded cooling crystallization process can be improved by semi-batch operation.

Introduction

Crystallization is one of the oldest chemical engineering processes in chemical, mineral, and pharmaceutical industries. It can generally be operated in continuous and batch modes. Continuous operation is often regarded as the ideal procedure for many

processes; however, it is not always true for crystallization processes. Batch operation often offers considerable advantages, such as simplicity of equipment and minimization of product losses. In many cases, only a batch crystallizer can produce the required crystal form, size distribution, or purity as a batch crystallizer can produce a narrow

crystal size distribution (CSD) and a large mean crystal size product. On the other hand, the main advantage of a continuous operation is that it achieves a higher yield than a batch operation. Additionally, the control of temperature, supersaturation, and all other parameters that influence CSD is less complicated [1, 2]. From this aspect, combining the best features of both batch and continuous operations; therefore, a semi-batch operation mode is applied resulting in higher production yield than normal batch operation [3]–[5].

In this study, the performance of semi-batch cooling crystallization is investigated and compared with a batch operation. A dynamic optimization approach is used to determine optimal operating conditions that optimize a chosen product quality. The seeded cooling crystallization of potassium sulfate as a case study is evaluated via simulation.

Mathematical model of a semi-batch crystallization process

The classical framework for modeling crystallization consists of population balance equation (PBE). Assuming that the crystallizer is well-mixed, crystal breakage and

agglomeration are negligible; the PBE with a characteristic length L can be described as

$$\frac{\partial f(L,t)}{\partial t} + G(t) \frac{\partial f(L,t)}{\partial L} + f \frac{d(\ln M)}{dt} = 0 \quad (1)$$

The mass balance of the solute per unit mass of solution:

$$\frac{dC}{dt} = -3\rho_c k_v G(t) \int_0^\infty L^2 f(L,t) dL - C(t) \frac{d(\ln M)}{dt} + \frac{F(t)C_{feed}}{M(t)} \quad (2)$$

The mass balance of solution in the crystallizer:

$$\frac{dM}{dt} = F(t) \quad (3)$$

Where f is the population density of crystals, ρ_c is the crystal density, k_v is the volume shape factor, C_p is the specific heat capacity of the slurry, ΔH_c is the heat of crystallization, G is the growth rate, μ_2 is the second moment of the population density, and F is the solution feed rate.

The kinetic phenomena that influence the formation of crystals are nucleation and growth. The driving force for both phenomena is the nonequilibrium state of the system measured by a relative supersaturation (S).

$$S = \frac{C - C_s(T)}{C_s(T)} \quad (4)$$

The modeling of nucleation and growth are usually simplified by assuming an empirical functional form as given in Eqs. (5) and (6).

$$B(t) = k_b \exp(-E_b / RT) S^b \int_0^\infty f(L, t) L^3(t) dL \quad (5)$$

$$G(t) = k_g \exp(-E_g / RT) S^g \quad (6)$$

In this work, the cooling crystallization of potassium sulfate as a case study is considered. The physical parameters of the crystallizer are shown in Table 1. The following equations are used to calculate the saturation and metastable concentrations corresponding to the solution temperature, T [6].

$$C_s(T) = 6.29 \times 10^{-2} + 2.46 \times 10^{-3} T - 7.14 \times 10^{-6} T^2 \quad (7)$$

$$C_m(T) = 7.76 \times 10^{-2} + 2.46 \times 10^{-3} T - 8.10 \times 10^{-6} T^2 \quad (8)$$

The initial distribution of the seeded crystals is assumed to be a parabolic distribution.

$$f_{seed}(L, 0) = \begin{cases} 0.0032(300-L)(L-250) & \text{for } 250\mu\text{m} \leq L \leq 300\mu\text{m} \\ 0 & \text{for } L < 250\mu\text{m} \text{ and } L > 300\mu\text{m} \end{cases} \quad (9)$$

Table 1 The physical parameters of the cooling crystallizer

Parameter	Value	Parameter	Value
b	1.45	g	1.5
k_b	285.0 1/(s·μm ³)	k_g	1.44×10 ⁸ μm/s
E_b/R	7,517.0 K	E_g/R	4,859.0 K
M	27.0 kg	ρ_c	2.66×10 ⁻¹² g/μm ³
k_v	1.5	t_f	30.0 min
$C(0)$	0.1743 g solute/ solvent	$T(0)$	323 K

Dynamic optimization strategy

In seeding crystallization process, a large volume of seeded crystals favors product quality. However, fine crystals obtained from nucleation should be kept in possible lower limit as they may cause difficulties in downstream operations e.g. filtration and drying. In regard to its infinite-dimensional nature, the direct use of PBE in optimization and design of controllers should be avoided [7]. In principle, the method of moments defines the i th moment in terms of the population density function by

$$\mu_i = \int_0^{\infty} f(L, t) L^i(t) dL \quad (10)$$

The rate equation of moments is derived by determining separately the moments of the fine and seeded classes for the CSD as in Eqs. (11) and (12),

$$\begin{aligned} \frac{d\mu_0^n}{dt} &= B(t), \\ \frac{d\mu_i^n}{dt} &= iG(t)\mu_{i-1}^n(t), \quad i=1,2,3 \end{aligned} \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \mu_0^s &= \text{constant}, \\ \frac{d\mu_i^s}{dt} &= iG(t)\mu_{i-1}^s(t), \quad i=1,2,3 \end{aligned} \quad (12)$$

The overall i th moments are defined as $\mu_i = \mu_i^n + \mu_i^s$. It is noted that since the crystal breakage or agglomeration model was not considered in the proposed crystallizer model [5].

The dynamic optimization can be stated mathematically as follows:

$$\min_{T(t), F(t)} \mu_3^n(t_f) \quad (13)$$

Subject to

The crystallizer model equations: Eqs. (2), (3), (11) and (12)

$$C_s \leq C \leq C_m$$

$$303 \leq T \leq 323 \text{ K}$$

$$\mu_3^s(t_f) \geq 8.3301 \times 10^9$$

Even though, the optimal profiles are designed based on moments model, in which the PBE is not directly calculated. However, the measurable CSD can be represented in terms of the i th moments; the physical meanings of the i th moments are total crystal number (μ_0), total crystal length (μ_1), total crystal surface area (μ_2), total crystal volume (μ_3).

Simulation results

In the seeded crystallization, the seeded crystals growing from initial seeded are considered as the product while fine crystals have to be removed because they affect product quality and also process economic. Hence, the purpose of operation is to find the optimal operating profile that can produce the crystal product specifying the desired quality in terms of total volume of seeded crystals, μ_3^s whereas the fine crystals (μ_3^n) have to be minimized as stated in Eq. (13).

In case of the same amount of solvent in semi-batch and batch reactors, the optimal operating profiles are illustrated in Figure 1 and 2. The crystal size distribution from

Figure 3 is characterized by the classes of nucleated and seeded crystals. The final crystal product qualities are given in Table 2. The results demonstrate that the semi-batch operation produces larger crystal volume and greater total number of crystals compared with the batch operation mode. It is evident that the semi-batch operation achieves a higher crystal yield than batch operation. Even though, the seeded crystal product is larger, a large number of fine crystals is produced which does not favor desired quality in seeded process.

On the basis of the result, if the customer specification of crystal product is restricted in the desired size of seeded crystals ($\mu_3^s \approx 8.3380 \times 10^9$), the semi-batch operation can produce the crystals with the desired size using the lower amount of solvent or a smaller crystallizer volume. On condition that using the same amount of solvent use, the semi-batch operation requires a shorter operation time compared with batch mode. The results are shown in Table 3. From these results, it is clearly indicated that the performance of the seeded cooling crystallization processes can be improved by semi-batch operation.

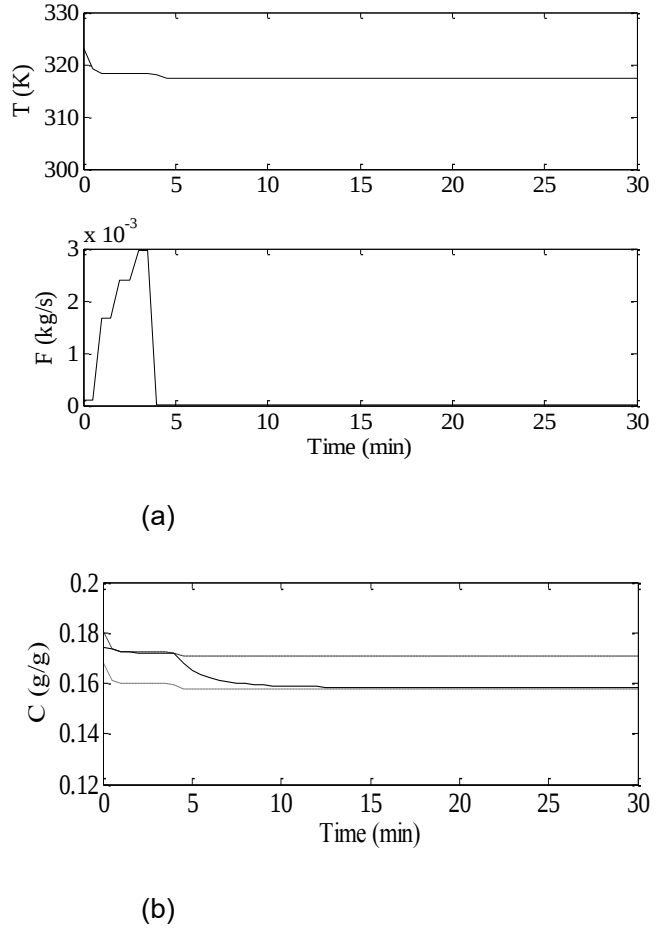
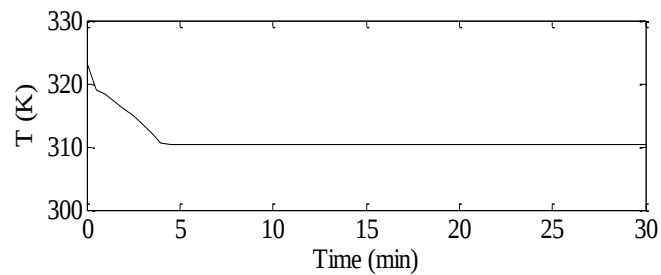
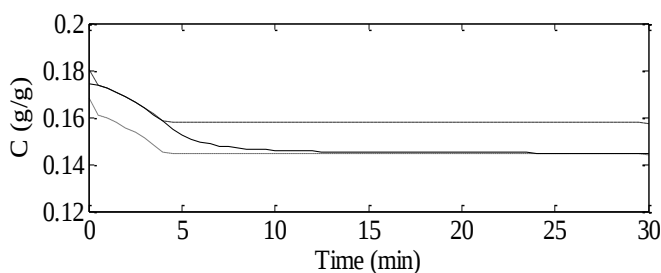


Figure 1 (a) The optimal temperature and solvent feed rate profiles, and (b) the concentration profile (C_s : dotted, C : solid, C_m : dash) on the seeded semi-batch crystallization process.



(a)



(b)

Figure 2 (a) The optimal temperature profile, and (b) the concentration profile (C_s : dotted, C : solid, C_m : dash) on the seeded batch crystallization process.

Table 2 Comparison of the crystal quality in case of the same amount of solvent ($M = 27$ kg)

Seeded Crystallization	$\mu_0^n(t_i)$	$\mu_3^n(t_i) \times 10^8$	$\mu_3^s(t_i) \times 10^9$
Semi-batch process	470	7.0039	8.7903
Batch process	365	6.6436	8.3380

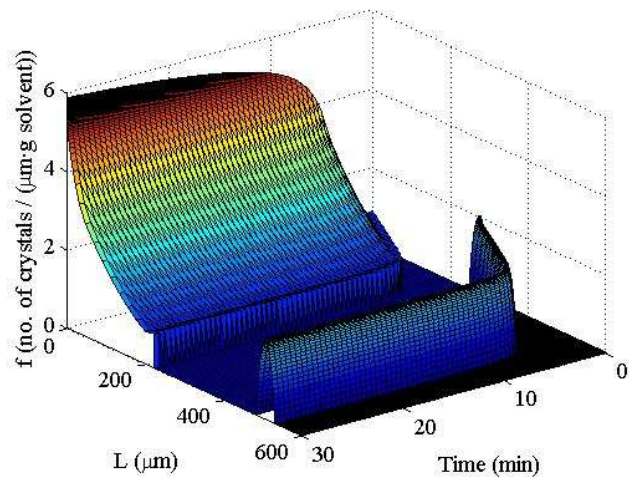


Figure 3 The evolution of crystal size distribution on the seeded semi-batch crystallization processes.

Table 3 The crystal quality in case of restriction on the seeded crystal quality

Seeded Crystalliza- tion		$\mu_3^n(t_i) \times 10^8$	$\mu_3^s(t_i) \times 10^9$
At $t_i = 30.0$ min	$M = 25.36$ kg	5.8719	8.3381
At $M = 27.0$ kg	$t_i = 17.0$ min	4.2899	8.3376

Conclusion

The aim of this work is to improve the performance of cooling crystallization. A semi-batch operation is proposed for producing the superior product quality. A dynamic optimization approach is used to determine optimal operating conditions that optimize a chosen product requirement. The results, in the case of the same amount of solvent, show that the semi-batch operation can produce larger crystal volume and greater total number of crystals. However, a large number of fine crystals is produced which does not favor desired quality in seeded process. On the other hand, in the case of restriction on the seeded crystal size, the semi-batch operation can produce the crystals with the desired size using the lower amount of solvent use. On condition that using the same amount of solvent, the semi-batch operation requires a shorter operation time. From these results, it is clearly indicated that the performance of the seeded cooling crystallization process can be improved by semi-batch operation.

Acknowledgement

The authors would like to acknowledge the support from Thailand Research Fund and Thammasat University Fund.

References

- 1) K. Choong and R. Smith, Novel strategies for optimization of batch, semi-batch and heating/cooling evaporative crystallization, *Chem. Eng. Sci.*, 59 (2004) 329-343.
- 2) T. Vu, R. Durham, J. Hourigan and Sleigh, Dynamic modeling optimization and control of lactose crystallization: Comparison of process alternatives, *Separation and Purification Tech.*, 48 (2006) 159-166.
- 3) K. Choong, R. Smith, Optimization of semi-batch reactive crystallization processes, *Chem. Eng. Sci.* 59 (2004) 1529-1540.
- 4) P. Mandare, V. Pangarkar, Semi-batch reactive crystallization of sodium perborate tetrahydrate: effect of mixing parameters on crystal size, *Chem. Eng. Sci.* 58 (2003) 1125-1133.
- 5) L. Goncalves, R. Giordano, R. Giordano, Mathematical modeling of batch and semibatch reactors for the enzymic synthesis of amoxicillin, *Process Biochem.* 40 (2005) 247-256.

6) D. Shi, N. El-Farra, M. Li, P. Mhaskar and P. Christofides, Predictive control of particle size distribution in particulate processes, Chem. Eng. Sci., 61 (2006) 268-281.

7) Q. Hu, S. Rohani, A. Jutan, Modeling and optimization of seeded batch crystallizers, Comp. Chem. Eng., 29 (2005) 911-918.