

モデル予測制御による触媒反応器のオンライン最適化*

陶 興文**・播戸直太**・西谷 紘一**・樺田 榮一**

On-line Optimization of a Catalytic Reactor by Model Predictive Control*

Xing-Wen TAO**, Naota BANDO**,
Hirokazu NISHITANI** and Eiichi KUNUGITA**

In the conventional optimizing control system the optimal policy determined at the static optimization level is transferred to the feedback control system as the set-point. The follow-up property to the set-point, however, becomes an issue when the catalyst deactivates rapidly and the optimal policy changes considerably at the next optimizing period and also when the process response delays.

In a proposed optimizing control system an optimal operational schedule until the next optimizing period is determined by using a reaction rate and a deactivation model to solve the issue. The resultant optimal policy during the period is effectively used to improve the follow-up property of the feedback control system by using the model predictive control algorithm. It works as an interface between the optimizer and the feedback control system.

Application of the proposed 3-level on-line optimizing control system to an experimental catalytic reactor showed excellent performance in preservation of the optimality.

1. はじめに

触媒を用いる反応器ではふつう時間経過とともに触媒活性が劣化する。それゆえ最適性を維持するためには触媒活性の劣化に対応して反応器の操作条件を変更する必要がある。この問題に関してまず反応速度と触媒劣化速度の定式化を行ない、それらを用いて最適操作条件を決定する研究が行なわれた。たとえば、Chouら²は全反応期間中の収率を最大にする反応温度政策が、いくつかの条件のもとで主反応の反応転化率を一定にする反応温度政策と一致することを示した。Ogunyeら¹¹は触媒反応器に関する一般的な評価関数のもとで、最大値原理を用いて最適政策を決定する方法を示した。樺田ら⁴はコーキングによる劣化が起こる反応プロセスについて触媒再生の最適切り替え周期を求めた。それらの研究ではオフラインで最適化問題を取り扱っている。それゆえ、モデルを用いて計算した最適政策をプログラムコントロールなどで実現したとしても開ループ制御となり、各種の

モデル誤差が存在する実プロセスでは最適政策である保証はない。

この欠点を補うため、あるサンプル周期で測定されるデータを利用して逐次、より正確な最適操作条件を決め直すオンライン最適化手法が用いられるようになった。たとえば、Bambergerら¹はプロセスの時系列モデル中のパラメータがゆっくり変化する場合、オンラインで推定したモデルパラメータからプロセスの定常パラメータ値を求め、これを用いて定常最適化問題の評価関数についての一次導関数(グラディエント)を計算して、逐次定常最適点に近づくように操作を行なう方式を提案した。またLeeら⁷やHamerら³は反応プロセスのオンライン最適化で、上位レベルの最適化機構で決定した最適政策を直接下位レベルのフィードバック制御系の設定値として渡す二つの階層からなる制御方式を用いた。この場合上位レベルの最適化機構では定常最適化が実行され、対象プロセスの動特性は使用されない。このように比較的大きな周期で定常最適化をくりかえし、そのつど結果を直接下位の制御系の設定値とし、これを小さな周期のフィードバック制御で実現する方式が、従来のオンライン最適化制御で多く見られる。

シタリングによるゆっくりした触媒劣化を伴う反応

* 原稿受付 1988. 10. 1

** 大阪大学 基礎工学部 Osaka University ; Toyonaka, Osaka 560, JAPAN

Key Words : process control, on-line optimization, catalyst deactivation, model predictive control, set-point controller.

器などでは定常最適化によって決定する最適操作の変化は比較的小さく、上で述べた制御方式で十分最適性を保つことができた¹⁸。しかし、コーキングによる速い触媒劣化を伴う反応器でこのようなオンライン最適化制御を行なうと、最適化周期の間に一定値として求めた解の最適性が崩れたり、与えた設定値への追従性に問題が生じる。

本研究では、最適化の周期ごとにただその時点での定常最適操作量を求めるのではなく、次の最適化時点までの有限期間の最適操作条件を決定する。またこのようにして決められた最適政策を忠実に実現するため、上位レベルの最適化機構と下位レベルのフィードバック制御系とのインターフェイスとして、デジタル制御で使われているモデル予測制御アルゴリズム (Model Predictive Control : MPC) を利用する。新しいオンライン最適化制御方式はこのように三つの階層から構成されている。

2. 新しいオンライン最適化制御方式

2.1 最適化問題の定式化

現在 (t_k) からある有限期間先の未来 ($t_k + \theta_1$) までの最適計画を次の評価関数の最小化によって決定する問題を考える。

$$\int_{t_k}^{t_k + \theta_1} g(z(t), y(t)) dt \quad (1)$$

ここで、 $z(t)$ は状態変数、 $y(t)$ は計画変数のベクトルである。また $z(t)$ と $y(t)$ の間の因果関係は次のように表わされるとする。

$$dz(t)/dt = f(z(t), y(t), p(t), t) \quad (2)$$

ここで $p(t)$ は既知パラメータのベクトルである。このモデル式と実プロセスとの間には必ず誤差があることから、周期 θ_1 ごとに $z(t)$ を直接または間接的に測定して、その値を (2) 式の微分方程式の初期値とする。

$$z(t_k) = z_0 \quad (3)$$

このとき、(2) 式を制約条件として (1) 式を最小にする計画変数 $y(t)$ を決定する問題は変分問題になる。しかし、期間 θ_1 を M 個の等しい小期間 θ_2 に分割して、各小期間で計画変数は一定とすると、問題は $\{\dim(y) \times M\}$ する定常最適化問題に簡略化することができる。

に表わす。

$$y(t) = y_{opt}(k, j) \quad (4)$$

$$ただし、t_k + (j-1)\theta_2 \leq t \leq t_k + j\theta_2$$

この新しいオンライン最適化方式の最適化機構で得られる解は、下位のフィードバック制御系の設定値の未来値として利用することができる。

もし、期間 $\{t_k \leq t \leq t_k + \theta_1\}$ で $\{z(t)\}$ および $\{y(t)\}$ の変化が小さく、評価関数 $g(z(t), y(t))$ への影響も小さいとき、上の計画問題を次のように t_k 時点のみで評価する定常最適化問題に簡略化することができる。

$$g(z(t_k), y(t_k)) \rightarrow \text{最小} \quad (5)$$

この場合サンプル周期 θ_1 の間、最適政策は一定とする。従来の多くのオンライン最適化制御ではこの簡略化した計画問題を最適化機構で解いていた。

2.2 制御問題の定式化

一般に計画変数を決められた値にするため、計画変数を被制御量に選びこれに影響を与えることのできる具体的な変数を操作量とするフィードバック制御系が用いられる。ふつうこれらの変数間には時間遅れなどの動特性が含まれる。いま被制御変数ベクトル $y(t)$ と実際の操作変数ベクトル $u(t)$ の間の動特性が、たとえば次のように伝達関数の形で表現されているとする。

$$Y(s) = G(s)U(s) \quad (6)$$

ここで、 $Y(s)$ 、 $U(s)$ は $y(t)$ 、 $u(t)$ をラプラス変換したもので、 $G(s)$ は伝達関数行列を表わす。

このプロセスの操作変数と被制御変数間の時間遅れのため、最適化機構で得られた最適政策を下位のフィードバック制御系の設定値として与えたとき、すばやく追従できない場合が起こる。そこで新しい方式では計算された最適政策を忠実に実現するため、最適化機構で得られた設定値の未来値を利用して設定値に対する追従性を向上させる。すなわち、最適化機構とフィードバック制御系間の調整にサンプル周期が θ_2 のモデル予測制御を用いる。これは設定値について進み補償をすることに相当するが、従来の進み補償法では設定値の現在値と出力情報を用いる経験的なチューニングに頼らなければならない。これに対してモデル予測制御では、フィードバック制御系が付いたプロセスを拡大したプロセスと見なし、その応答モデルで表わされた動特性モデルを用いて系統的に制御系を設計することができる。

2.3 最適化制御方式の構造

Fig. 1 に従来多く用いられた二つの階層からなるオンライン最適化制御方式を示す。この方式では、下位のフィードバック制御系のサンプル周期 (θ_2) より大きな周期 (θ_1) ごとに、その時点での状態や定常モデル中のパラメータを更新し、新しい条件のもとでその時点でのべき最適操作条件 (Y_{opt}) を決める。ふつう一組の値が求められ、下位レベルのフィードバック制御系の設定値 (Y_R) として与えられる。

Fig. 2 に本論文で提案する新しいオンライン最適化制御方式を示す。新しい方式の最適化機構では次の最適

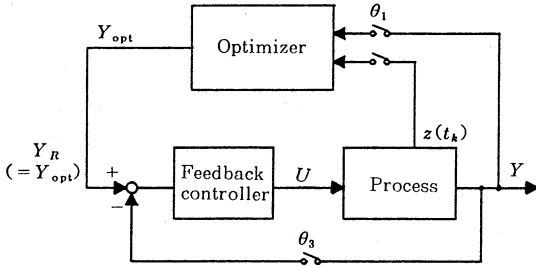


Fig. 1 Conventional 2-level optimizing control system

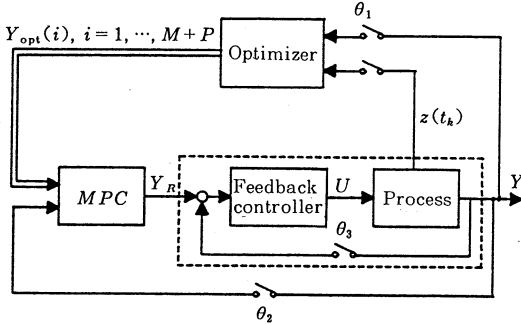


Fig. 2 New 3-level optimizing control system

化までの期間 (θ_1) の最適操作条件を決定する。すなわち、最適化周期 (θ_1) をいくつかの小期間 (θ_2) に分け、多期間の操作条件についてのスケジュール問題を解く。この解はフィードバック制御系の設定値の未来値に対応する。この情報を有効に生かして最適操作条件を忠実に実現するため、最適化機構とフィードバック制御系の間にサンプル周期が θ_2 のモデル予測制御が用いられる。以上によって新しい方式では、サンプル周期の異なる $\theta_1, \theta_2, \theta_3$ (ただし、 $\theta_1 > \theta_2 > \theta_3$) の三つのフィードバックループが含まれることになる。

- ① 最適化機構 (サンプル周期: θ_1)
- ② モデル予測制御 (サンプル周期: θ_2)
- ③ フィードバック制御系 (サンプル周期: θ_3)

3. モデル予測制御

モデル予測制御は近年プロセス制御の分野で広く応用されているデジタル制御方式である。その基本的な考え方は、プロセスのモデルを使ってプロセスの被制御量の挙動を現時点から未来にわたって予測し、その予測値と目標値との差を評価することによって現時点以降の操作量を決定するものである。代表的なものとして、インパルス応答モデルが使われている Model Algorithmic Control (MAC)¹⁵ とステップ応答モデルが使われている Dynamic Matrix Control (DMC)¹⁶ と呼ばれる方式がある。

本研究ではプロセスの1入力-1出力間のダイナミッ

クスをサンプル周期が θ_2 のステップ応答モデルで表わす。以後時刻 t_k を省略して k で表わす。

$$y_M(k+m) = \sum_{i=1}^m a_i \Delta r(k+m-i) + a_N r(k+m-N-1) \quad (7)$$

ここで、 $y_M(k+m)$ はサンプル時点 $k+m$ でのモデル出力、 $\{a_i\}$ はステップ応答係数、 $\Delta r(k+m-i)$ は操作量 r の変化量である。

$$\Delta r(k+m-i) = r(k+m-i) - r(k+m-i-1) \quad (8)$$

現サンプル時点 k において、上のステップ応答モデルを用いて、次のように未来のサンプル時点 $k+m$ での出力を予測する。

$$y(k+m|k) = y_M(k+m) + d(k+m|k) \quad (9)$$

ここで、未来の外乱の予測値 $d(k+m|k)$ について次の仮定をおく。

$$d(k+m|k) = \{y(k) - y_M(k)\} \quad (10)$$

ただし、 $y(k)$ は現サンプル時点 k での出力の測定値である。モデル予測制御では、現サンプル時点 k でのべき操作量の変化量 $\Delta r(k)$ を、 P 個先のサンプル時点までのプロセスのふるまいを評価する次式の最小化により求める。 P は予測ホライズンと呼ばれる。

$$J = \|\Gamma\{S(k+P) - \hat{Y}(k+P)\}\|^2 + \|\mathbf{B}\Delta R(k+P)\|^2 \quad (11)$$

ここで、

$$S(k+P) = [y_R(k+1), y_R(k+2), \dots, y_R(k+P)]^T$$

$$\hat{Y}(k+P) = [y(k+1|k), y(k+2|k), \dots, y(k+P|k)]^T$$

$$\Delta R(k+P) = [\Delta r(k), \Delta r(k+1), \dots, \Delta r(k+P-1)]^T$$

また重み行列 Γ, B は $P \times P$ の対角行列である。

$$\Gamma = \text{diag}(\gamma_1 \ \gamma_2 \ \dots \ \gamma_P)$$

$$B = \text{diag}(\beta_1 \ \beta_2 \ \dots \ \beta_P)$$

(9) 式をシステム制約として (11) 式を最小化することにより次の制御則が得られる¹⁰。

$$\Delta R(k+P) = \Omega^{-1}(\Gamma A)^T \Gamma [\{S(k+P) - Y(k)\} - \Psi \Delta R(k-1)] \quad (12)$$

ここで、

$$\Omega = (\Gamma A)^T \Gamma A + (B)^T B$$

$$\Delta R(k-1) = [\Delta r(k-1), \Delta r(k-2), \dots, \Delta r(k-N+1)]^T$$

$$A = \begin{bmatrix} a_1 & 0 & \dots & 0 \\ a_2 & a_1 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ a_P & a_{P-1} & \dots & a_1 \end{bmatrix}$$

$$\Psi = \begin{bmatrix} a_2 - a_1 & a_3 - a_2 & \cdots & a_N - a_{N-1} \\ a_3 - a_1 & a_4 - a_2 & \cdots & a_N - a_{N-1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ a_{P+1} - a_1 & a_{P+2} - a_2 & \cdots & a_N - a_{N-1} \end{bmatrix}$$

4. 触媒劣化とオンライン最適化

4.1 反応速度と触媒劣化速度

本論文で取り扱った二酸化炭素とメタンの反応 ($\text{CO}_2 + \text{CH}_4 \rightarrow 2\text{H}_2 + 2\text{CO}$) は一般に複数の反応が併発して進むが、実験を行なった反応条件 {反応温度範囲 (700~800 °C); 原料ガスモル流量比 ($F_{\text{CO}_2}/F_{\text{CH}_4} = 0.5$)} では、シフト反応 ($\text{CO}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{CO} + \text{H}_2\text{O}$) はほとんど起こらず、主反応のみを考慮すればよいことが分かっている^{5,6}。またオンライン最適化に先立つ研究⁵で、主反応の反応速度 R [mol/g-catalyst min] は次式で表わされることが示されている。

$$R = k(T) \cdot f(X) \quad (13)$$

ここで、

$$k(T) = \bar{k} \exp(-E/T) \quad (14)$$

\bar{k} および E は実験データに基づいて決定されたパラメータ値である。(13) 式中の $f(X)$ は主反応における二酸化炭素の反応転化率 X の関数であることを表わしている。

また、先に示した反応条件では、コーキングによる触媒劣化が起こることが知られている^{8,12}。この場合の反応速度は先の研究⁵で、劣化が始まっていない新鮮な触媒上での反応速度と触媒の活性因子 A の積で表わされた。このとき、 A の時間変化を表わすモデルとして次の劣化速度式が実験データから得られている⁵。

$$\frac{dA}{dt} = -KA \quad (15)$$

ここで、

$$K = k_{d1} \exp(-E_{d1}/T) - k_{d2} \exp(-E_{d2}/T) \quad (16)$$

k_{d1} , k_{d2} , E_{d1} , E_{d2} は実験データから決められたパラメータ値である。

上に示した反応速度式および劣化速度式から次の特徴が分かる。

- (1) 反応速度式はただ一つの反応速度定数を含む。
- (2) 劣化速度が温度のみに依存することから、触媒の劣化は温度履歴によって決まる。

これら二つの条件が成立するとき、全反応期間中の収率を最大にする温度操作条件は反応器出口転化率を任意の時刻で一定にすることと等価になることが知られてい

る²。また実際のプラントでは、下流のプロセスを安定に運転するためにも、反応器出口転化率を一定にすることが広く行なわれている。このことから本論文のオンライン最適化制御では最適化機構において、触媒の劣化にかかわらず反応転化率を一定にする温度操作条件を決定することにした。

4.2 最適化機構

本実験で用いた内径 15 mm、触媒層長さ 10 mm の管型反応器の滞留時間は 0.1 秒と、各制御系のサンプル周期に比べてかなり小さいことから、反応器内の温度および触媒活性の分布は一様と仮定した。管型反応器の触媒層を n 個の微小触媒層 (Δw g-catalyst) に分け、第 j 層について物質収支式を立てると、任意の時刻 t において層出口における反応転化率 $X_j(t)$ は次のように表わされる。

$$X_j(t) = X_{j-1}(t) + A(t)R(T(t), X_{j-1}(t))\Delta w / F_{\text{CO}_2} \quad (17)$$

それゆえ、

$$X_j(t) = X_0(t) + A(t) \left[\Delta w / (F_{\text{CO}_2}) \right] \sum_{i=0}^{j-1} R(T(t), X_i(t)) \quad (18)$$

ここで、 F_{CO_2} はフィード中の CO_2 モル流量である。 $X_0(t) = 0$ および $R = k(T(t)) \cdot f(X(t))$ を考慮すると次式が得られる。

$$X_j(t) = A(t)k[T(t)] \left[\Delta w / (F_{\text{CO}_2}) \right] \sum_{i=1}^{j-1} f(X_i) \quad (19)$$

いま、触媒の劣化状態 $A(t)$ に合わせて次式を満足するように反応温度 $T(t)$ を決めることにする。

$$A(t)k[T(t)] = A(0)k[T(0)] \quad (20)$$

このとき、 $X_j(t)$ は $X_j(0)$ と等しくなり、時間によって変化しない。それゆえ、反応器出口転化率 $X_n(t)$ も変化しない。以後 X_n を省略して X で表わす。

サンプル周期 θ_1 のガスクロサンプル時点 I を出発点として、サンプル周期 θ_2 で (15) 式を差分して次の劣化因子の推定式を得る。

$$\begin{aligned} A(I+m) &= A(I+m-1) - K(I+m-1)[A(I+m-1)]\theta_2 \\ & \quad (21) \end{aligned}$$

ここで

$$\begin{aligned} K(I+m-1) &= k_{d1} \exp\left[-\frac{E_{d1}}{T(I+m-1)}\right] \\ & \quad - k_{d2} \exp\left[-\frac{E_{d2}}{T(I+m-1)}\right] \quad (22) \end{aligned}$$

ただし、 $A(I)$ はガスクロサンプル時点 (I) で反応器出口転化率が実測されたとき、次式から求められる。

$$A(I) = \bar{X}/X[T(I)] \quad (23)$$

ここで、 \bar{X} は転化率の実測値、 $T(I)$ はガスクロサンプル時点 (I) における実際の反応器温度、 $X[T(I)]$ は劣化していない新鮮な触媒を用いたときの予想転化率である。

最適温度操作条件 T_{opt} は次の手順で計算される。

① ($I+m-1$) 時点での実際の反応器温度 $T(I+m-1)$ が $T_{opt}(I+m-1)$ に一致するとして、周期 θ_2 の次のサンプル時点での劣化因子の値 $A(I+m)$ を (21), (22) 式より計算する。

② $A(I+m)$ を (20) 式の $A(t)$ に代入して、次の時点 ($I+m$) での最適設定温度 $T_{opt}(I+m)$ を計算する。

以上の手順 ① ② を繰り返して、 $m=1$ から $m=M+P$ までの $T_{opt}(I+m)$ を計算する。ここで、 $M=\theta_1/\theta_2$ 、 P はモデル予測制御の予測ホライズンである。

4.3 フィードバック制御系の設計

反応器温度 T とヒータの操作信号 U の間の動特性は次の伝達関数で表わされることが分かっている⁵。

$$G(s) = \frac{T(s)}{U(s)} = \frac{K_p(\tau_3 s + 1)e^{-\tau_{4s}}}{(\tau_1 s + 1)(\tau_2 s + 1)} \quad (24)$$

伝達関数中のパラメータ K_p , τ_i ($i=1, 2, 3, 4$) は劣化状態や操作条件に依存する。予備実験で得た三つの代表的な劣化状態におけるパラメータ値を Table 1 に示す。フィードバック制御系として、次の速度型デジタル PI 制御則¹⁴を使用した。

$$U(k) = U(k-1) + K_c \{Y(k-1) - Y(k)\} + K_I \{Y_R(k) - Y(k)\} \quad (25)$$

ここで、 K_c , K_I は制御器パラメータである。

本研究では任意の劣化状態で、閉ループ特性がある決められた範囲内に入るように制御器パラメータを決定した。具体的には、次に示した2組の減衰係数 ξ に関する条件が Table 1 に示した三つの劣化状態で常に満足されるように PI パラメータを決定した⁹。チューニングの条件と結果を次に示す。

(チューニング A) $0.6 \leq \xi \leq 0.8$

$$K_c = 0.116; K_I = 0.0098$$

(チューニング B) $0.8 \leq \xi \leq 1.0$

$$K_c = 0.240; K_I = 0.0084$$

Table 1 Parameter variations in the transfer function

Time (min)	K_p ($^{\circ}\text{C}/\text{V}$)	τ_1 (s)	τ_2 (s)	τ_3 (s)	τ_4 (s)
30	189.7	812.4	9.6	6.8	15.0
180	194.5	788.7	3.9	1.1	15.0
300	196.0	1075.7	6.6	10.3	15.0

前者は後者に比べ、速応性を重視した条件となっている。

4.4 モデル予測制御の設計

モデル予測制御の制御対象となる反応器と PI 制御器からなる拡大系の動特性は、PI 制御器のパラメータおよび劣化状態に依存する。先に示した2組の PI パラメータのもとで、代表的な数個の劣化状態で拡大系のステップ応答を取った結果、チューニング A では、劣化状態が異なるとステップ応答はかなりずれるが、チューニング B では劣化状態が異なっても、ステップ応答はほとんど変化しない。このことは拡大系の動特性が劣化状態に大きな影響を受けないことを意味し、プロセスの動特性の変化に対して、よりロバストな制御系を設計する上で役立つ。

Table 2 にサンプル周期1分のステップ応答モデルの係数を示したが、チューニング A, B ではモデル次数 (N) はそれぞれ16と10になった。またモデル予測制御アルゴリズム中の設計パラメータは次の値を用いた。

$$P = N, \Gamma = I, B = I$$

Table 2 Coefficients of the step response model for the model predictive control

Tuning A ($N = 16$)

i	1	2	3	4	5
a_i	0.1575	0.7874	1.2598	1.3386	1.1911
i	6	7	8	9	10
a_i	0.8976	0.8346	0.8976	1.0394	1.0551
i	11	12	13	14	15
a_i	1.0236	0.9921	0.9764	0.9843	0.9921
i	16				
a_i	1.0000				

Tuning B ($N = 10$)

i	1	2	3	4	5
a_i	0.0222	0.4436	0.8095	0.8871	0.8760
i	6	7	8	9	10
a_i	0.9204	0.9758	0.9980	1.0202	1.0000

5. 実験結果

5.1 実験装置

市販ガスを用いて二酸化炭素とメタンの反応を常圧流通法で行なった。実験装置の概略を Fig. 3 に示す。用いた触媒は、ニッケルをアルミナに10% 担持させた含浸法触媒である^{5,6}。反応器出口ガス中には、二酸化炭素、窒素、メタン、一酸化炭素、水素および水蒸気が含まれている。このガス中の水蒸気を、アイストラップおよびシリカゲル乾燥機で除去した後、ガスサンプルを用いて1 ml 採取し、ガスクロマトグラフ装置 GC-7A および

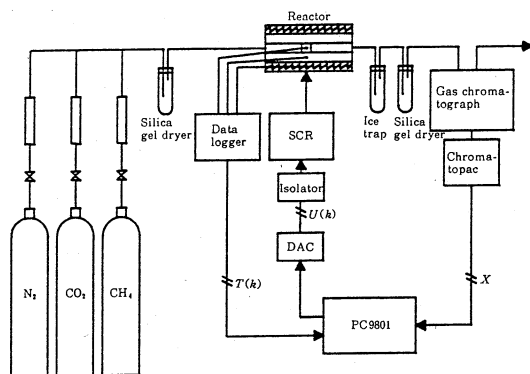


Fig. 3 Schematic diagram of experimental apparatus

GC-3 BT (島津製作所製) を使ってガスの分析を行なう。また、クロマトパック装置 CR-3 A (島津製作所製) を用いてガスクロ分析結果を処理して、反応転化率 \bar{X} を計算した。

計装システムは次のように構成されている。

(1) クロマトパック CR-3 A に、インターフェイス RS 232 C を取り付け、パーソナルコンピュータ PC-9801 (日本電気製) に分析データを転送した。

(2) 反応器温度を熱電対で検出し、多点温度測定装置 YODAC 8 (横河電機製) で電圧から温度 (小数点以下一桁) に変換し、 GPIB インターフェイス を介して、PC-9801 に測定温度 $T(k)$ を転送した。

(3) PC-9801 に精度 12 ビットのデジタル/アナログ変換器 DA 12-4 (98) (コンテック製) を取り付け、この D/A 変換器の出力 U (0~10 V の電圧信号) をアイソレータで 4~20 mA の電流信号とし、電力変換器 SCR でヒータ加熱電流に変換した。

一方、制御用コンピュータとしては PC-9801 を反応器温度の最適化計算、モデル予測制御、反応器温度の PI 制御に共通に用いた。各サンプル周期は次のように選んだ。

$$\theta_1 = 20 \text{ 分}; \theta_2 = 1 \text{ 分}; \theta_3 = 5 \text{ 秒}$$

5.2 実験方法⁵

内径 15 mm の石英製管型反応器の中央部に 1 g の触媒を層厚み約 10 mm に固定充填した後、反応器に窒素を流しながら昇温する。750 °C に到達すると、フィードガスを窒素から水素に変え、この温度で 3 時間触媒を還元する。その後再び、反応器内を窒素で置換しながら所定の反応温度に調整し、安定後改質反応を開始する。20 分の間隔で、ガスクロ分析を行ない、1 点絶対検量線法を用いて反応器出口ガスの組成を求める。また、反応量論関係から、改質反応による二酸化炭素の反応転化率を計算する。

5.3 実験結果と考察

まず、20 分周期のガスクロ測定時点で、そのときの反応転化率を決められた値に保つ温度を計算して、これを次のガスクロサンプルまでの設定温度としてフィードバック制御系に与えたときの結果を Fig. 4 に示した。このとき PI パラメータは追従性を重視してチューニング A を選んだ。図には 20 分ごとに実測された転化率 \bar{X} および設定された温度への追従の様子が示されている。これより 20 分間に触媒の劣化がかなり進み、次のガスクロサンプルでは反応転化率が相当低下してしまうことが分かる。

つぎに、最適化機構で 20 分間の最適温度を決める計画問題を 1 分刻みで離散化して解いて、その結果を直接下位の PI 制御器の設定値とした場合の結果を示す。この場合も PI パラメータは設定値への追従性を重視しチューニング A を用いた。経過時間 0~300 分間の劣化因子 A の実測値 (20 分刻み) と予測値 (1 分刻み)、最適計画温度 T_{opt} (1 分刻み) および実測転化率 \bar{X} (20 分刻み) の変化を Fig. 5 に示す。ただし最適化機構が 40 分以降で動作したときの結果である。転化率 \bar{X} が希望

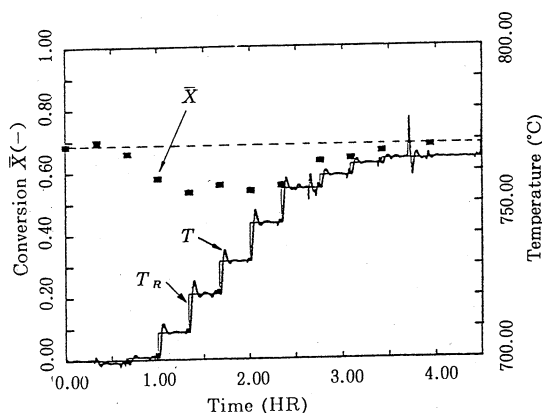


Fig. 4 Result of the conventional 2-level optimizing control system

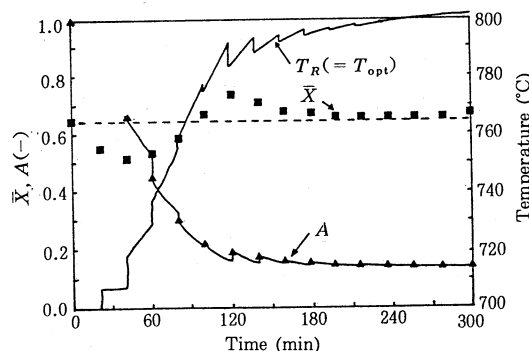


Fig. 5 Result of the 2-level optimizing control system with a scheduling function in the optimizer

転化率(破線)の周辺でかなり振動している。この原因の一つは設定値への追従性が悪いことにある。Fig. 6に経過時間80~100分での設定値 T_R への追従の様子を示した。PI制御器は積分器を1個しか持たないことから、ランプ状の設定値変化に偏差を残している。希望転化率からはずれるもう一つの原因は反応速度および劣化速度式に含まれるモデル誤差である。この誤差については設定値への追従性を改善したあとで議論する。

本論文で提案した新しい制御方式のもとでの全経過時間の実験結果をFig. 7に示した。この場合モデル予測制御によって設定値への追従性が改善されることから、PIパラメータは劣化状態によってプロセスの動特性がほとんど変わらないチューニングBを用いた。Fig. 8は最も劣化の激しい区間、すなわち経過時間80~100分における応答を示している。図中丸印はガスクロサンプル時、最適化機構によって計算された最適温度政策 T_{opt} を示し、階段状破線がMPC出力すなわち T_R を表わす。すなわちMPCでは実線で示した出力 T の軌道が T_{opt} に一致するようにPI制御器への設定値 T_R を操作している。 T_R が T_{opt} よりある程度大きめに設定されることによって、反応器温度 T がかなり精度よく目標値 T_{opt} に追従できていることがわかる。モデル予測制御ではランプ状の設定値変化に対しても偏差を残していない

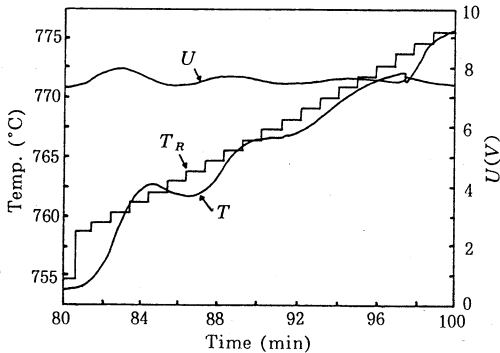


Fig. 6 Follow-up property of the minor control loop

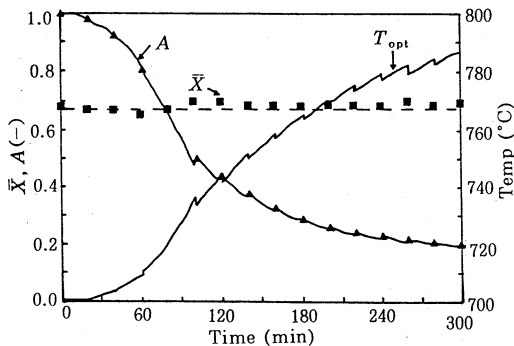


Fig. 7 Result of the 3-level optimizing control system

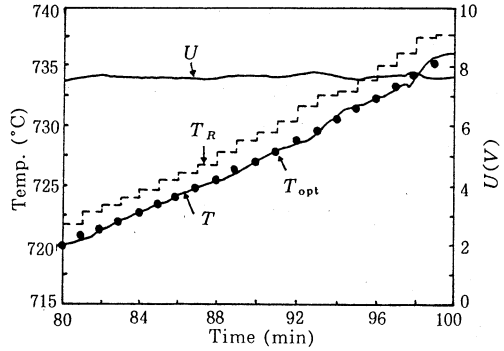


Fig. 8 Follow-up property of the model predictive control

い。また実測された転化率 \bar{X} は目標値の $\pm 4\%$ 以内に収まっている。設定値に対する追従性がほぼ完全なことを考えると、このずれは反応速度および劣化速度式の精度および変分問題の離散化による誤差と考えられる。

6. おわりに

触媒反応器について、触媒の劣化進行によらず反応転化率を一定に保つためのオンライン最適化制御方式について考察した。劣化因子の測定がガスクロサンプルごとにしかできないため、劣化モデルを用いて近い未来の劣化因子の推定と最適反応器温度の決定を行なった。また、最適化機構で計算した反応器温度の設定値に追従させるため、プロセスの動特性を考慮して操作量を決定するモデル予測制御を用いた。これによって設定温度への追従性が向上して、従来のオンライン最適化制御方式と比較すると、反応器のパフォーマンスが大幅に改善できることを実験により確認した。

本論文で提案した新しいオンライン最適化制御方式は(1)最適操作条件の時間変化が大きく、(2)プロセスの時間遅れが大きい場合に特に有効に働くと考えられる。

参考文献

- 1) W. Bamberger & R. Isermann : Adaptive On-line Steady-State Optimization of Slow Dynamic Processes ; Automatica, Vol. 14, pp. 223~230 (1978)
- 2) A. Chou, W. H. Ray & R. Aris : Simple Control Policies for Reactors with Catalyst Decay ; Trans. I. Chem. E., Vol. 45, pp. 153~159 (1967)
- 3) J. W. Hamer & C. B. Richenberg : On-Line Optimizing Control of a Packed-Bed Immobilized-Cell Reactor ; AIChE J., Vol. 34, No. 4, pp. 626~632 (1988)
- 4) E. Kunugita, H. Yasuoka, E. Nakanishi & T. Otake : Optimum Cycle for a Catalytic Dehydrogenation-Regeneration Process ; Bulletin of the Japan Petroleum Institute, Vol. 18, No. 1, pp. 73~78 (1976)
- 5) E. Kunugita, H. Nishitani & X. W. Tao : Dynamic Model of a Fixed Bed Reactor with Catalyst Deactivation, J. Chem. Eng. Japan, Vol. 22, No. 3, pp. 258~263 (1989)

- 6) E. Kunugita, T. Hashitsume, X. W. Tao & Y. C. Wan : Production of Synthesis Gas from Carbon Dioxide ; Proc. of 3rd World Congress of Chem. Eng., Vol. I, Tokyo, Japan, Sept. (1986)
- 7) K. S. Lee & W. K. Lee : On-Line Optimizing Control of a Nonadiabatic Fixed Bed Reactor ; AIChE J., Vol. 31, No. 4, pp. 667~675 (1985)
- 8) H. Nishitani, X. W. Tao & E. Kunugita : Robustness of Fixed Gain Feedback Controller for Time Varying Process ; Proc. of 26th SICE Annual Conference, Vol. II, Intern. Session, Hiroshima, Japan, July (1987)
- 9) H. Nishitani, X. W. Tao & E. Kunugita : Design of Fixed Gain Control System with Required Tolerance ; J. Chem. Eng. Japan, Vol. 22, No. 3, pp. 263~269 (1989)
- 10) 西谷：化学プロセスのモデル予測制御；SICE シンポジウム「実システムのモデリングと制御系設計」テキスト，pp. 1~8 (1987)
- 11) A. F. Ogunye & W. H. Ray : Optimal Control Policies for Tubular Reactors Experiencing Catalyst Decay ; AIChE J., Vol. 17, No. 1, pp. 43~51 (1971)
- 12) B. W. Wojciechowski : A Theoretical Treatment of Catalyst Decay, J. Can. J. Chem. Eng., Vol. 46, pp. 48~52 (1968)
- 13) H. Nishitani, X. W. Tao & E. Kunugita : Design of Gain Scheduling Control System with Required Tolerance, J. Chem. Eng. Japan, Vol. 22, No. 5, pp. 454~459 (1989)
- 14) 木村：デジタル信号処理と制御，昭晃堂，p. 271 (1982)
- 15) J. Richalet, A. Rault, J. L. Testud & J. Papon : Model Predictive Heuristic Control-Applications to Industrial Processes ; Automatica, Vol. 14, pp. 413~428 (1978)
- 16) C. R. Cutler & B. L. Ramaker : Dynamic Matrix Control—A Computer Control Algorithm ; Proc. of AIChE 86th National Mtg., Houston (1979)