バッチ重合プロセスのモデルベース B2B 制御

小 河 守 正*

A Model-based B2B (Batch to Batch) Control for An Industrial Batch Polymerization Process

Morimasa OGAWA*

This paper describes overview of a model-based B2B (batch to batch) control for an industrial batch polymerization process. In order to control the reaction temperature precisely, several methods based on the rigorous process dynamics model are employed at all design stage of the B2B control, such as modeling and parameter estimation of the reaction kinetics which is one of the important part of the process dynamics model. The designed B2B control consists of the gain scheduled I-PD/II²-PD control (I-PD with double integral control), the feed-forward compensation at the batch start time, and the model adaptation utilizing the results of the last batch operation. Throughout the actual batch operations, the B2B control provides superior control performance compared with that of conventional control methods.

Key Words: batch process control, reaction temperature, process dynamics model, unstable system, model-based control

1. 緒 言

容積が数リットルの反応装置を使った試作実験などにより製造処方が確立された高機能性ポリマーを、スケールアップした数 m³ の反応器で変種変量生産するバッチ重合プロセスを制御対象とする。新製品のため品質規格が厳しく、初回のバッチ運転から直ちに、品質を規定する反応温度を精密に制御することが求められた。このため、プロセスモデルをベースにした B2B (Batch to Batch) 制御システムを開発し実用化した。

バッチ重合（あるいは反応）プロセス制御の主体である反応温度制御には、PID 制御にフィードフォワード制御などの機能を付加した方式^{1), 2)}が多用されている。その PID パラメータなどは、バッチ運転を積み重ね経験的に調整している。しかし、プロセスの非線形性が強くバッチ経過時間と共にプロセス動特性が大きく変わるので、経験則だけで PID パラメータを適切に調整することは難しい。このため、PID 制御の性能を厳しく追求することをあきらめ、on-off 制御を基本にしたアルゴリズム^{3), 4)}に置き換えることすらある。

プロセス制御の新しい研究成果を活用するには、連続重合プロセスを対象に開発された非線形モデル制御^{5), 6)}を、バッチプロセスに拡張することがまず挙げられる。つぎに、一般化予測制御に基づいたセルフチューニング PID 制御系設計法⁷⁾などの、適応制御を適用する選択もある。また、製品品質

の制御のために、バッチ運転実績を反復学習する機能をもつモデル予測制御⁸⁾も提案されている。さらに、バッチ運転実績をフィードバックし、制御条件（たとえば反応温度の時間プロファイルや制御パラメータ）を適正化する Batch to Batch Control (Run to Run Control と呼ばれる)^{2), 9)}は、ことに有用とされている。これらの研究は、一部を除いて、シミュレーションにより検証されたプロトタイプを与えるもので、実プロセスに適用できる段階に至っていない。

このような背景から、実用性と一般性を重視し、厳密な重合プロセスモデルを核にした、PID 制御と B2B 制御による反応温度の精密制御システムを開発することにした。本論文では、その枠組みと実現技法について述べる。まず、プロセスフローと B2B 制御システムの構成を説明する。そして、重合プロセスモデルと、それを逐次線形化したプロセス動特性モデルを与える。つぎに、I-PD コントローラと II²-PD コントローラ (I-PD コントローラに 2 重積分動作を付加したもの) の、プロセス動特性モデルに基づく PID, PII²D 設定則を示す。あわせて代表品種の制御実績を簡単に紹介する。最後に、バッチ運転実績データを用いて重合プロセスモデルを適応させる B2B 制御の方法を示す。

2. バッチ重合プロセスと B2B 制御システム

バッチ重合プロセスのフローを Fig. 1 に示した。攪拌機を備えた完全混合槽型反応器に、原料モノマーと溶媒を定量仕込み反応温度まで加温する。そこに重合開始剤（触媒）を定量加えると、数分以内の誘導時間 (induction period) だけ遅れて急激にラジカル重合反応が始まる。反応温度を一定に保つ主反応は約 4 時間で、その後さらに反応温度を昇温して

* (株) 山武 倉敷市神田 2-7-27

* Yamatake Corp., 2-7-27 Kanda, Kurashiki

(Received July 6, 2009)

(Revised January 5, 2010)

反応を加速し、開始剤添加後 6 時間程度で反応終点となる。加温開始から生成ポリマーの抜き出しを完了するまでのバッチ時間はおおむね 12 時間である。

Fig. 1 Batch polymerization process

重合反応による発熱量は、反応器のコイルとジャケットを一定流量で循環する冷媒により除熱する。循環冷媒の入口温度を 2 種類の冷水と蒸気の供給量を調節することにより制御し、反応温度制御は冷媒入口温度制御とのカスケード制御による。さらに、バッチ経過時間に対応して冷媒入口温度の目標値を変更する、フィードフォワード制御 (FFC: Feed-Forward Control) を付加している。

Fig. 2 Configuration of the B2B control system

B2B 制御システムの構成を Fig. 2 に示した。これは、重合反応の物質収支と熱収支を表わす重合プロセスモデルを核として、つぎの四つの機能からなっている。第一に、重合の反応速度定数を実験データから推定する。第二に、反応温度を目標値軌道に一致させる冷媒入口温度をシミュレーションにより定め、それをフィードフォワード制御として実行する。第三に、I-PD (もしくは II²-PD) コントローラの PID (PII²D) パラメータを求め、それをゲインスケジューリングすることによって反応温度をフィードバック制御する。最後に、バッチ運転実績データを用いて、重合プロセスモデルを適応的に調整する。このモデルをベースに、フィードフォワード制御パラメータと I-PD/II²-PD 制御のゲインスケジューリング

を更新することにより、B2B 制御を実現する。

3. 重合プロセスモデル

重合プロセスのダイナミクスモデルは、ラジカル重合の反応モデル (重合反応モデル) と熱収支モデルからなる。まず、重合反応モデル^{10), 11)}は、開始剤とモノマーの重量濃度 (残存量の仕込量に対する分率) x_i, x_m の時間変化を表わすもので、それぞれの反応速度定数 $k_i, k_m > 0$ である。そして、反応温度 T_r と冷媒温度 T_c に関する熱収支モデルでは、反応液と冷媒の熱容量 C_r, C_c 、重合反応熱 $(-\Delta H_r) > 0$ による発熱量 Q_r 、反応液と冷媒の熱交換による除熱量 Q_{c1} 、循環冷媒による除熱量 Q_{c2} である。このとき、バッチ経過時間 t における重合プロセスモデルは次式のようになる。

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} x_i(t) = -k_i x_i(t) \\ \frac{d}{dt} x_m(t) = -k_m \sqrt{x_i(t)} x_m(t) \\ \frac{d}{dt} T_r(t) = \frac{1}{C_r} (Q_r(t) - Q_{c1}(t)) \\ \frac{d}{dt} T_c(t) = \frac{1}{C_c} (Q_{c1}(t) - Q_{c2}(t)) \end{cases} \quad (1)$$

開始剤の反応速度定数は一定とし、モノマーの反応速度定数だけに温度依存性があるとする。このモノマー反応速度をアレニウス式 (Arrhenius rate expression) で表わす。ここで、基準状態値 T_{r0}, k_{m0} 、温度依存定数 b_m である。

$$k_m(t) = k_{m0} \exp \left[-b_m \left(\frac{1}{T_r(t)} - \frac{1}{T_{r0}} \right) \right] \quad (2)$$

重合レート R_m は、モノマー濃度の変化速度の絶対値にモノマー仕込量 W_m を乗じた次式で与えられる。

$$R_m(t) = k_m(t) \sqrt{x_i(t)} x_m(t) W_m \quad (3)$$

熱収支モデルの発熱量と除熱量はつぎのようになる。コイルとジャケットを循環する冷媒の出入口温度 T_{ci}, T_{co} の差が小さいので、冷媒温度はその出入口温度の算術平均とし等温とした。ここで、冷媒の比熱 c_c 、循環流量 f_c である。

$$Q_r(t) = (-\Delta H_r) R_m(t) \quad (4)$$

$$Q_{c1}(t) = U(t) A (T_r(t) - T_c(t)) \quad (5)$$

$$Q_{c2}(t) = 2c_c f_c (T_c(t) - T_{ci}(t)) \quad (6)$$

コイルとジャケットの伝熱面積 A_c, A_j と総括伝熱係数 U_c, U_j 、全伝熱面積 $A = A_c + A_j$ とする。それぞれの伝熱面積で加重平均した総括伝熱係数 $U(t) = (U_c(t)A_c + U_j(t)A_j)/A$ である。 U_c, U_j はモノマー濃度などから推算できる。

代表的な品種について、反応温度を目標値に一致させる冷媒温度を、重合プロセスモデルのシミュレーションにより求め Fig. 3 に示した。このうち、冷媒入口温度はフィードフォワード制御に用いることになる。

4. プロセス動特性モデル

I-PD/II²-PD コントローラによる反応温度制御を設計する

Fig. 3 Simulation results to provide desired profile of the reaction temperature for the typical product

には、操作量：冷媒入口温度と制御量：反応温度の関係を表わす、線形のプロセス動特性モデルが必要になる。そこで、重合プロセスモデルを逐次線形化し、状態方程式モデルを得る。それを伝達関数モデルに変換し、モデルベース PID/PII²D 設定則の導出に用いる。

バッチプロセスの状態変数は常に変化し、連続プロセスでは一般的な定常状態（すべての状態変数が一定の状態）が存在しない。そこで、バッチ経過時間に対応して与えられる反応温度目標値軌道に、反応温度を完全に追従制御できると仮定する。そのときの重合レートは(1)式の重合反応モデルと(2)、(3)式から定まり、さらに総括伝熱係数も決まる。

そして、反応温度目標値軌道に沿った重合レートのもとで、(1)式における熱収支モデルの左辺 = 0 となる状態、すなわち反応温度が目標値軌道に常に一致するように冷媒入口温度が調節されている状態を、仮想的な平衡状態と呼ぶことにする。この平衡状態のまわりで熱収支モデルだけを逐次線形化することにより、反応温度のプロセス動特性モデルを得る。

たとえば、バッチ経過時間 t の平衡状態における重合レートを $\bar{R}_m$ のように表わす。このとき、反応温度の微小変化 $\Delta T_r(t)$ による重合レート変化量 $\Delta R_m(t)$ は次式で表わされる。

$$\begin{aligned}\Delta R_m(t) &= \frac{\partial R_m}{\partial k_m} \Delta k_m = \frac{\partial R_m}{\partial k_m} \frac{dk_m}{dT_r} \Delta T_r(t) \\ &= \bar{R}_m \frac{b_m}{\bar{T}_r^2} \Delta T_r(t)\end{aligned}$$

発熱量の変化量 $\Delta Q_r(t)$ は、 $\bar{Q}_r = (-\Delta H_r) \bar{R}_m$ なので、つぎのようになる。

$$\Delta Q_r(t) = (-\Delta H_r) \Delta R_m(t) = \frac{b_m \bar{Q}_r}{\bar{T}_r^2} \Delta T_r(t)$$

4.1 状態方程式モデル

逐次線形化したうえで、平衡状態からの変化量を $\Delta T_r(t) \rightarrow T_r(t)$ のように書き換えると、状態方程式モデルはつぎのように表わされる。

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \mathbf{x}(t) = \mathbf{A} \mathbf{x}(t) + \mathbf{b} u(t) \\ y(t) = \mathbf{c} \mathbf{x}(t) \end{cases} \quad (7)$$

状態量 $\mathbf{x}(t) \in \mathbb{R}^{2 \times 1}$ 、操作量 $u(t)$ 、制御量 $y(t)$ は

$$\begin{aligned}\mathbf{x}(t) &= \begin{bmatrix} T_r(t) & T_c(t) \end{bmatrix}^T \\ u(t) &= T_{ci}(t), \quad y(t) = T_r(t)\end{aligned}$$

であり、 $\mathbf{A} \in \mathbb{R}^{2 \times 2}$ 、 $\mathbf{b} \in \mathbb{R}^{2 \times 1}$ 、 $\mathbf{c} \in \mathbb{R}^{1 \times 2}$ はそれぞれつぎのようになる。

$$\begin{aligned}\mathbf{A} &= \begin{bmatrix} -a_{11} & a_{12} \\ a_{21} & -a_{22} \end{bmatrix}, \quad \mathbf{b} = \begin{bmatrix} 0 \\ b_2 \end{bmatrix}, \quad \mathbf{c} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \end{bmatrix} \\ a_{11} &= \frac{1}{C_r} \left(\bar{U} A - \frac{b_m \bar{Q}_r}{\bar{T}_r^2} \right), \quad a_{12} = \frac{\bar{U} A}{C_r} \\ a_{21} &= \frac{\bar{U} A}{C_c}, \quad a_{22} = \frac{\bar{U} A + 2c_c f_c}{C_c} \\ b_2 &= \frac{2c_c f_c}{C_c}\end{aligned}$$

4.2 伝達関数モデル

状態方程式モデルから、伝達関数モデル $P(s)$ は

$$\begin{aligned}P(s) &\equiv \frac{y(s)}{u(s)} = \mathbf{c} (s\mathbf{I} - \mathbf{A})^{-1} \mathbf{b} \\ &= \frac{n_0}{d_2 s^2 + d_1 s + 1}\end{aligned} \quad (8)$$

であり、 n_0, d_2, d_1 はつぎのようになる。

$$\begin{aligned}n_0 &= \frac{a_{12} b_2}{a_{11} a_{22} - a_{12} a_{21}} \\ d_2 &= \frac{1}{a_{11} a_{22} - a_{12} a_{21}}, \quad d_1 = \frac{a_{11} + a_{22}}{a_{11} a_{22} - a_{12} a_{21}}\end{aligned}$$

(8)式の分母多項式の根の逆数である時定数 T_{p1}, T_{p2} は

$$\begin{aligned}\{T_{p1}, T_{p2}\} &= \frac{a_{11} + a_{22}}{2(a_{11} a_{22} - a_{12} a_{21})} \\ &\times \left[1 \pm \sqrt{1 - \frac{4(a_{11} a_{22} - a_{12} a_{21})}{(a_{11} + a_{22})^2}} \right]\end{aligned} \quad (9)$$

となり、ゲイン K_p は次式で表わされる。

$$K_p = \frac{a_{12} b_2}{a_{11} a_{22} - a_{12} a_{21}} \quad (10)$$

動特性を支配する時定数を $T_{p1} (|T_{p1}| > T_{p2} > 0)$ とする。 T_{p1} が負のとき不安定プロセスとなり、その条件は

$$a_{11} a_{22} - a_{12} a_{21} < 0 \quad (11)$$

である。このときは(10)式で表わされるゲインも負になる。重合反応の進行に伴い、不安定から安定なシステムに移行していくプロセスを、伝達関数モデルで見通しよく表現するために、ゲインと時定数は絶対値を取り常に正の値^(注1)にする。

(注1) プロセスのゲインが正であることは、操作量：冷媒入口温度と制御量：反応温度の物理的な因果関係から明らかである。

すなわち, $|K_p| \rightarrow K_p$, $|T_{p1}| \rightarrow T_{p1}$ とする. そして, プロセスむだ時間^(注2) T_L を付加した伝達関数モデルはつぎのようになる. 分母第1項の $\pm$ 符号が, 正のとき安定プロセス, 負になると不安定プロセスである. K_p, T_{p1} の計算値が負になる場合に, 両者を絶対値に置き換え $\pm$ 符号を負にする.

$$P(s) = \frac{K_p}{(T_{p1}s \pm 1)(T_{p2}s + 1)} e^{-T_L s} \quad (12)$$

不安定条件を物理的に解釈するために状態方程式モデルに戻ると, $a_{11} < 0$ のとき不安定プロセスになる. すなわち,

$$\bar{U}A - \frac{b_m \bar{Q}_r}{\bar{T}_r^2} < 0$$

である. 平衡状態 $\bar{Q}_r = \bar{Q}_{cl} = \bar{U}A(\bar{T}_r - \bar{T}_c)$ から $\bar{U}A = \bar{Q}_r / (\bar{T}_r - \bar{T}_c)$ なので, 不安定条件はつぎの簡単な関係式で与えられる.

$$\bar{T}_r - \bar{T}_c > \frac{\bar{T}_r^2}{b_m} \quad (13)$$

このように, 反応速度定数に温度依存性があり, 反応温度と冷媒温度の温度差が上式の条件を満たすとき, 重合反応プロセスは不安定になる. これは, 重合レートが高く発熱量が大きい反応初期において, ポリマーの生成により総括伝熱係数が急激に低下するため, 冷媒温度を下げ反応温度との温度差を大きくとり除熱量を確保している状態を意味する.

Fig. 4 Step responses of the transfer function model at each batch elapsed time

数値例

伝達関数モデルのステップ応答がバッチ経過時間と共に大きく変化するようすを, 代表品種について Fig. 4 に示した. バッチ経過時間 0.25 h 刻みで, そのときのモデルパラメータを用い, 冷媒入口温度を 1 °C 階段状に上げたときの反応温度の時間変化を描いたものである.

重合反応開始後 2 時間までは不安定プロセス, その後は安

(注2) 制御システムを構成する温度計測器, 操作部さらにカスケード制御 2 次ループの遅れなどが重なったものを, プロセスむだ時間として経験的に付加する.

定プロセスとなることがわかる. また, モデルパラメータのゲインと応答を支配する時定数は 1000 倍以上も変化する. しかし, ゲインが大きいときは時定数が長く, 逆にゲインが小さいときの時定数は短い. このため, 応答初期の立ち上がり速度 (ステップ応答の時間 15 min までの反応温度変化量) は, 重合開始時と 6 時間後で 7.5 倍変わるだけで, 変化速度の連続性も保たれる. これは, ゲインスケジューリングにより反応温度制御が可能であることを示唆している.

5. 反応温度精密制御

反応温度の精密制御システムを Fig. 5 に示した. 反応温度の目標値軌道に対応して冷媒入口温度を調整するフィードフォワード制御と, 反応温度と冷媒入口温度のカスケード制御で構成される.

Fig. 5 Precise reaction temperature control system

フィードフォワード制御則は, 反応温度目標値軌道を与え, 重合プロセスモデルによるシミュレーションにより, 冷媒入口温度の時間パターンとして定まる. 得られた結果を時系列テーブルとして制御システムに設定する.

以降では, I-PD/PI²-PD コントローラによる反応温度制御のモデルベース PID/PII²D 設定則を与え, それによりゲインスケジューリングした制御実績を示す.

5.1 I-PD 制御 PID 設定則

カスケード制御 2 次ループの冷媒入口温度制御は, 混合プロセスが制御対象なので, 非常に速い応答特性をもつ. さらに, (12) 式の伝達関数モデルにおける, 冷媒の熱容量による遅れに対応する時定数とむだ時間はそれぞれ 0.2 min 程度なので, $T_{p2}, T_L \ll (T_{p1}/10)$ である. そこで, これらを見捨てる 1 次遅れ特性とみなす.

$$P(s) \approx \frac{K_p}{T_{p1}s + 1} \quad (14)$$

I-PD コントローラは, PID パラメータ $\{K_c, T_i, T_d\}$, 微分ゲイン $1/\gamma$, 目標値 $r(s)$, 制御量 $y(s)$, 制御偏差 $e(s) = r(s) - y(s)$, 操作量 $u(s)$ として次式で表わされる.

$$u(s) = K_c \left(-y(s) + \frac{1}{T_i s} e(s) - \frac{T_d s}{1 + \gamma T_d s} y(s) \right) \quad (15)$$

その目標値応答特性 $W_c(s) = y(s)/r(s)$ はつぎのようになる.

$$W_c(s) = \frac{1}{1 + T_i s + T_i T_d s^2 + (T_i s / K_c P(s))} \quad (16)$$

望ましい目標値応答特性 $W_d(s)$ を 2 次臨界制動とし、応答の速さを規定するチューニングパラメータ T_F を用いる。

$$W_d(s) = \frac{1}{(1 + T_F s)^2} \quad (17)$$

$W_c(s), W_d(s)$ の分母多項式の係数相等条件から、微分時間がゼロとなる条件を付加して、比例ゲインと積分時間が求まる。そして微分時間は、経験的に積分時間の 1/8 に設定することにした。このようにして得られる PID 設定則を **Table 1** に整理した。ここで、 $q \equiv T_F / T_{p1} < 1$ である。

Table 1 PID settings formula of the I-PD control system

	unstable process	stable process
K_c	$\frac{1}{K_p} \left(\frac{2}{q} + 1 \right)$	$\frac{1}{K_p} \left(\frac{2}{q} - 1 \right)$
T_i	$q(q+2)T_{p1}$	$q(2-q)T_{p1}$
T_d	$\frac{T_i}{8}$	$\frac{T_i}{8}$

代表品種において、チューニングパラメータ $T_F = 3.0$ min とした PID パラメータのゲインスケジューリングを **Fig. 6** に示した。

Fig. 6 Scheduled PID settings for the I-PD controller

比例ゲインはバッチ経過時間が進むにつれ初期値 8.5 から増大するが、計測ノイズにより操作量の無用な変動が生じるので、上限値 30 で飽和させる。それでも、後述するように、ランプ状外乱に対する定常偏差を -0.043°C に抑え込める。また、制御実績の終点近傍（バッチ経過時間 8 h）で、比例ゲインを 30 $\rightarrow$ 15 に下げるテストを行なったところ、重合温度の変動幅が大きくなり制御性能が悪化した。これらのことから、比例ゲインの上限値 30 は適切だと考えられる。積分時間は一定とみなしてよく 6.2 min である。微分時間は積分

時間の 1/8 で 0.8 min と短い。

5.2 I-PD 制御実績

ゲインスケジューリング I-PD 制御による制御実績を **Fig. 7** に示した。この品種は緩やかに重合が進むため、フィードバック制御だけでも十分な制御性能が得られる。重合開始直後は、冷媒入口温度の低下が遅れるため、反応温度は $+0.50^\circ\text{C}$ オーバーシュートする。その後は、目標値 $\pm 0.20^\circ\text{C}$ 未満の変動に抑えられる。これは、制御システム設計の要求性能（目標値 $\pm 0.50^\circ\text{C}$ 以内）を十分に満たしている。

冷媒入口温度は明らかに振動的である。これは、プロセスが不安定状態にあるとき、操作量を揺らし続けて制御量の変化を補償する動作である。これを抑えるため比例ゲインを小さくすると、外乱抑制性能が低下し、制御量の変動が増大することが確かめられている。またこれは、流出熱がないため、平衡状態のまわりで冷却と加熱を繰り返す、バッチ重合プロセス特有の現象とも解釈できる。

Fig. 7 Actual control performance only using the gain-scheduled I-PD control

5.3 Π^2 -PD 制御の必要性

このように、I-PD 制御は良い制御性能を示すが、それを注意深く観察すると、微小な定常偏差が生じていることがわかる。これはバッチ経過時間を通して、ランプ状外乱が作用していることによる。操作量変化を時間軸について上下反転したものが外乱に相当し、重合の進行に伴う発熱量と伝熱特性の変化に起因する。**Fig. 7** から明らかなように、適当に時間を区分すれば、いずれもランプ状外乱とみなせる。

プロセスの伝達関数が原点に極をもたない場合、フィードバック制御システムがランプ状外乱にオフセットフリーとなるには、内部モデル原理から、コントローラは自身の極にランプ状外乱の原点の 2 位極を含まなければならない¹²⁾。すなわち、2 重積分動作が必要になる。

Π^2 -PD コントローラでプロセス $P(s)$ をフィードバック制御するシステムを **Fig. 8** に示した。2 重積分動作による目標値応答の行き過ぎを抑えるため、目標値 $r(s)$ は目標値補償器 $S(s)$ を通し、その出力 $r_s(s)$ をコントローラに与える。外乱 $d(s)$ は操作量 $u(s)$ に加法的に作用するプロセス入力等価外乱とする。 Π^2 -PD コントローラは、積分動作と 2 重積分

動作が制御偏差 $e(s) = r(s) - y(s)$ に作用し、比例動作と微分動作 (微分ゲイン $1/\gamma$) は制御量 $y(s)$ だけに働く。これにより、1組の PII²D パラメータ $\{K_c, T_i, T_{i2}, T_d\}$ で、目標値追従性と外乱抑制性を同時に満たす 2 自由度制御システムを構成する。

Fig. 8 I I²-PD feedback control system

5.4 II²-PD 制御の PII²D 設定則

プロセス伝達関数モデルとして (12) 式を用い、一般性のある PII²D 設定則を与える。ランプ状外乱は、持続時間 t_r の間に操作量等価な外乱量 d_r だけ、定速度 $a \equiv d_r/t_r$ で変化する。

$$d(s) = \frac{a}{s^2} \quad (a \equiv d_r/t_r) \quad (18)$$

この外乱に対する制御量の望ましい応答特性 $W_d(s)$ を一般化臨界制動応答とする¹³⁾。制御システムの因果律を保つため、プロセス動特性モデルの相対次数 r (注 3) に対して一般化臨界制動の次数 $n = r + 2$ とし、制御量応答をプロセスむだ時間だけ遅らせる。ここには、制御性能を調整する二つのパラメータがある。整定時間を決めるパラメータ T_F と、制御量の減衰比を規定するパラメータ αK_p である。

$$W_d(s) = \frac{y(s)}{d(s)} = \frac{\alpha K_p T_F s^2 / a}{(1 + T_F s)^n} e^{-T_L s} \quad (19)$$

ランプ状外乱に対する望ましい制御量応答を実現する PII²D 設定則を導く¹⁴⁾。II²-PD 制御に内在する目標値フィルターを目標値入力側 (制御偏差演算部の前) に出すと、コントローラを次式の PII²D コントローラ $C_2(s)$ として PII²D 設定則を設計できる。

$$C_2(s) = K_c \left(1 + \frac{1}{T_i s} + \frac{1}{T_{i2}^2 s^2} + \frac{T_d s}{1 + \gamma T_d s} \right) \quad (20)$$

外乱応答が望ましい制御量応答に一致する条件から、この PII²D コントローラはつぎのように定まる。

$$C_2(s) = \frac{1}{P(s)} \left(\frac{P(s)}{W_d(s)} - 1 \right) \quad (21)$$

これに、 $n = 4$ とした $W_d(s)$ と $P(s)$ を代入し、むだ時間を Maclaurin 展開近似すると、分数多項式表現はつぎのようになる。 α は無次元で、ランプ状外乱速度 a が時間の逆数の次

(注 3) s に関する分母多項式の次数と分子多項式の次数の差。

元 h^{-1} をもつので、分数多項式の係数の次元はいずれも一致する。

$$C_2(s) = \frac{1 + n_1 s + n_2 s^2 + n_3 s^3 + n_4 s^4}{d_0 s^2 (1 + d_1 s + d_2 s^2 + d_3 s^3 + \dots)} \quad (22)$$

$$n_1 = 4T_F, \quad n_2 = 6T_F^2 \mp \frac{\alpha}{a} T_F$$

$$n_3 = 4T_F^3 - \frac{\alpha}{a} T_F (T_{p1} \pm T_{p2})$$

$$n_4 = T_F^4 - \frac{\alpha}{a} T_F T_{p1} T_{p2}$$

$$d_0 = \frac{\alpha K_p T_F}{a}, \quad d_1 = -T_L, \quad d_2 = \frac{T_L^2}{2}, \quad d_3 = -\frac{T_L^3}{6}$$

(20) 式の PII²D アルゴリズムの不完全微分項を無視したものと (22) 式を分母多項式で表わし、係数相等条件から PII²D 設定則を得る。

$$K_c = \frac{n_2 - (n_1 - d_1) d_1 - d_2}{d_0} \quad (23)$$

$$T_i = \frac{n_2 - (n_1 - d_1) d_1 - d_2}{n_1 - d_1} \quad (24)$$

$$T_{i2} = \sqrt{n_2 - (n_1 - d_1) d_1 - d_2} \quad (25)$$

$$T_d = \frac{n_3 - [n_2 - (n_1 - d_1) d_1 - d_2] d_1}{n_2 - (n_1 - d_1) d_1 - d_2} - \frac{(n_1 - d_1) d_2 - d_3}{n_2 - (n_1 - d_1) d_1 - d_2} \quad (26)$$

5.5 II²-PD 制御シミュレーション

バッチ重合開始から 6 時間にわたる、制御シミュレーションの結果を Fig. 9 に示した。

Fig. 9 Simulation results of the reaction temperature control using I-PD and II²-PD controller

上段が制御量である反応温度。中段は操作量である冷媒入口温度制御目標値で、II²-PD 制御の操作量を実線、I-PD 制御のそれは破線で表わした。下段には I-PD 制御と II²-PD 制御の操作量の差を示した。バッチ経過時間 3 h の時点で、そのときの重合反応発熱量の 30 % に相当する発熱量増加外乱をステップ状に与えている。I-PD 制御のチューニングパラメータ $T_F = 3$ min とした。II²-PD 制御では、整定時間調整定数 $T_F = 3$ min、減衰度調整定数 αK_p は $T_d \approx 0.1 T_i$ とするように数値的に求めた。

シミュレーションでは $\text{II}^2\text{-PD}$ 制御が優れた制御性能を示し、 I-PD 制御との違いを挙げるとつぎようになる。今後は実運転でその優位性と実用上の課題を確認していく。

- 重合開始後の急激なランプ状外乱による反応温度の上昇は、 I-PD 制御の $+0.45^\circ\text{C}$ に対し、 $\text{II}^2\text{-PD}$ 制御では $+0.35^\circ\text{C}$ に抑えられる。さらに、目標値 68°C に回復する時間を $1/2$ に短縮できる。
- その後の緩やかなランプ状外乱に対して、 $\text{II}^2\text{-PD}$ 制御は定常偏差なく目標値に追従するが、 I-PD 制御ではバッチ経過時間 $1 \sim 3 \text{ h}$ の間 -0.043°C 程度の微小な定常偏差を生じる。これは実運転でも観察されており、Fig. 9 下段に示したように、 I-PD 制御の操作量が $\text{II}^2\text{-PD}$ 制御のそれよりもわずかに 0.043°C 程度高いことに起因している。
- ステップ状外乱に対して、 $\text{II}^2\text{-PD}$ 制御はやや振動的な応答となる。これは、2 重積分動作により操作量がオーバーシュートするためである。

6. B2B 制御

ここでいう B2B 制御は、バッチ運転の実績データを用いて重合プロセスモデルを適応的に調整し、その結果をこれまで述べてきたモデルベース制御に反映するものである。同品種の実績データを使うので、重合反応モデルは固定し、熱収支モデルを適応させる。熱収支モデルの主な変動要因は、反応液粘度とコイル・ジャケット総括伝熱係数の推算誤差、さらに伝熱面の汚れによる総括伝熱係数の変化である。

実績データとして、バッチ経過時間、冷媒入口温度、反応温度の時系列データ $\{t(k), T_{ci}(k), T_r(k)\}$ を用いる。ここで、サンプリング周期 τ の離散時間 t_k の時点 k である。平滑化した冷媒入口温度 $\hat{T}_{ci}(k)$ を重合プロセスモデルの入力とし、その出力である反応温度 $\hat{T}_r(k)$ を得る。その実績値との 2 乗誤差を最小とする非線形最適化問題を数値的に解き、重合プロセスモデルの伝熱特性適応パラメータ λ を得る。この一連の仕組みを Fig. 10 に示した。

$$\min_{\lambda} \sum_k (\hat{T}_r(k) - T_r(k))^2 \quad (27)$$

適応パラメータ $\lambda = [\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3]$ はつぎの意味をもつ、まず、総括伝熱係数 U は反応液粘度 μ や攪拌機回転数 N などにより変化する。その推算値 $\hat{U}(t) = h(\mu(t), N, \dots)$ をパラメータ λ_1 で調整し、 $U(t) = \lambda_1 \hat{U}(t)$ とする。つぎに、反応液の粘度はそのモノマー濃度 x_m により変わる。これを、初期粘度 μ_0 、モノマー濃度依存定数 μ_1, n にパラメータ λ_2, λ_3 を用いて、 $\mu(t) = \lambda_2 \mu_0 + \mu_1 (1 - x_m(t))^{\lambda_3 n}$ のように近似する。

実施例を Fig. 11 に示した。上段は初期の重合プロセスモデルのシミュレーションと実績データを対比したもので、下段がパラメータ適応後の同様の比較である。反応温度はもとより冷媒入口温度のシミュレーション結果が、実績データに最小 2 乗の意味で接近していることがわかる。このときの適応パラメータは、総括伝熱係数を 1.3 倍に、反応液の初期粘

度を $1/5$ にするものとなった。

Fig. 10 Adaptation of the polymerization process model utilizing results of last batch operation

Fig. 11 Results of adaptation of the polymerization process model

7. 結 言

高機能性ポリマーや医薬品中間原料の製造などますます重要性の高まるバッチプロセスにふさわしい、一般性のある優れた制御方式の枠組みを確立することが求められている。ここで示したプロセスモデルをベースにしたアプローチは、その原型候補の一つとなろう。その制御性能の高さが現場で実証されていることもあり、本方法が応用されることを期待している。

重合反応モデルは取り扱う物質と反応機構によりさまざまであるが、熱収支モデルは一般的なものである。本方法では、これらを併せた厳密な重合プロセスモデルを作成し、それを逐次線形化した伝達関数モデルにより、不安定から安定に推移するプロセス動特性を表現した。これにより、厳密な重合プロセスモデルからフィードフォワード制御と B2B 制御を、伝達関数モデルに基づきゲインスケジューリング $\text{I-PD}/\text{II}^2\text{-PD}$ 制御を、それぞれ設計できることを示した。

プロセス制御技術者の多くは、これまで数多くの連続プロセスを対象に、新しい技法の研究開発あるいは実用化に努め

てきたが、今後はバッチプロセスにも目を向け課題を解決していく時機にあると思う。そのためには、反応機構と反応速度定数を推定するための実験データ、反応生成物質の粘度などの物性、伝熱係数推算式などがそろっていないといけない。触媒研究者、プロセス設計エンジニアそしてプロセス制御技術者らが、それぞれの専門とする知識、情報、経験を共有することが特に大切である。

謝辞 この制御システムを開発する機会を与えていただいた関係者の皆様に、心からお礼申し上げます。また、多くの有益なコメントをいただいた、James B. Rawlings 教授（ウィスコンシン大学）、北森俊行名誉教授（東京大学）、片山徹教授（同志社大学）、加納学准教授（京都大学）に深く感謝します。

参 考 文 献

- 1) B.G. Lipták: Controlling and optimizing chemical reactor, *Chemical Engineering*, May 26, 69/81 (1986)
- 2) D.E. Seborg, T.F. Edgar and D.A. Mellichamp: *Process Dynamics and Control Second Edition*, 602/610, John Wiley & Sons, Inc. (2004)
- 3) 大塚, 古谷, 松島: ジャケット付き反応器の温度制御, 化学装置, 2000 年 6 月号, 66/71 (2000)
- 4) 鈴木秀明: 化学工学エンジニアは何でも屋, それが楽しい, 化学工学, **70**-4, 269 (2006)
- 5) 関, 大山, 小河: 逐次線形化に基づく非線形モデル予測制御 - 化学反応器への応用, 計測自動制御学会論文集, **38**-1, 61/66 (2002)
- 6) R. Bindlish and J.B. Rawlings: Target linearization and model predictive control of polymerization processes, *AIChE Journal*, **49**-11, 2885/2899 (2003)
- 7) 三浦, 今枝, 橋本, Wood, 服部, 大西: PVC 重合反応器における一般化予測制御法に基づくオートチューニング PID 制御系設計法, 化学工学論文集, **25**-2, 248/252 (1999)
- 8) K.S. Lee and J.H. Lee: Iterative learning control-based batch process control technique for integrated control of end product properties and transient profiles of process variables, *Journal of Process Control*, **13**, 607/621 (2003)
- 9) T.L. Clarke-Pringle and J.F. MacGregor: Optimization of molecular-weight distribution using batch-to-batch adjustments, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **37**, 3660/3669 (1998)
- 10) 橋本健治: 反応工学, 17/21, 培風館 (1982)
- 11) J.B. Rawlings and J.G. Ekerdt: *Chemical Reactor Analysis and Design Fundamentals*, 538/543, Nob Hill Publishing (2002)
- 12) 片山徹: 新版フィードバック制御の基礎, 133/135, 朝倉書店 (2002)
- 13) 荒木光彦: PID 調節計のパラメータ調整則の発展, システム/制御/情報, **50**-12, 441/446 (2006)
- 14) 北森俊行: 制御の現場と制御理論の整合性, 46/61, 計測自動制御学会プロセス制御専門家養成塾補講 (2008)

《付 録》

A. 実験データに基づく反応速度定数の推定

重合反応モデルの反応速度定数をパラメータ推定する方法¹¹⁾を数値例と共に示す。ポリマーの製造処方を開発する実験により、反応時間（バッチ経過時間） $t(n)$ のときのモノマー濃度 $\tilde{x}_m(n)$ の実測値が与えられる。その $n_{\max}$ 組のデータ $\{t(n), \tilde{x}_m(n) | n = 1, 2, \dots, n_{\max}\}$ から反応速度定数 k_i, k_m を推定する。

A.1 重合反応モデル

重合反応モデルは、すでに(1)式で示した。その反応速度定数（パラメータ）推定問題を定式化するために、重合反応モデルの状態変数とパラメータの表記法をつぎのように変える。状態変数の初期値は $x_1(0) = 1, x_2(0) = 1$ である。

$$\begin{aligned} x_1(t) &= x_i(t), \quad x_2(t) = x_m(t) \\ y(t) &= x_m(t) = x_2(t) \\ \theta_1 &= k_i, \quad \theta_2 = k_m \end{aligned}$$

重合反応モデルはつぎのようになる。

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \mathbf{x} = \mathbf{f}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) \\ \mathbf{x}(0) = \mathbf{g}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) \\ y = h(\mathbf{x}) \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

ここで、 $\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}, \mathbf{f}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}), \mathbf{g}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}), h$ はつぎのとおりである。

$$\begin{aligned} \mathbf{x}(t) &= \begin{bmatrix} x_1(t) & x_2(t) \end{bmatrix}^T \\ \boldsymbol{\theta} &= \begin{bmatrix} \theta_1 & \theta_2 \end{bmatrix}^T \\ \mathbf{f}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) &= \begin{bmatrix} f_1(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) & f_2(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) \end{bmatrix}^T \\ f_1(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) &= -\theta_1 x_1(t) \\ f_2(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) &= -\theta_2 \sqrt{x_1(t)} x_2(t) \\ \mathbf{g}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) &= \begin{bmatrix} 1 & 1 \end{bmatrix}^T \\ h(\mathbf{x}) &= x_2(t) \end{aligned}$$

A.2 パラメータ推定問題の定式化

パラメータ推定問題を一般化して定式化するため、状態変数と出力変数などを以下のように拡張する。複数次 $k_{\max}$ の出力変数の実験データ $\tilde{\mathbf{y}}$ が与えられるものとしている。

$$\begin{aligned} \mathbf{x} &= \begin{bmatrix} x_1(t) & x_2(t) & \cdots & x_{i_{\max}}(t) \end{bmatrix}^T \\ \mathbf{f}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) &= \begin{bmatrix} f_1(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) & f_2(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) & \cdots & f_{i_{\max}}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) \end{bmatrix}^T \\ \boldsymbol{\theta} &= \begin{bmatrix} \theta_1 & \theta_2 & \cdots & \theta_{j_{\max}} \end{bmatrix}^T \\ \mathbf{y} &= \begin{bmatrix} y_1(t) & y_2(t) & \cdots & y_{k_{\max}}(t) \end{bmatrix}^T \\ \tilde{\mathbf{y}} &= \begin{bmatrix} \tilde{y}_1(t) & \tilde{y}_2(t) & \cdots & \tilde{y}_{k_{\max}}(t) \end{bmatrix}^T \\ \mathbf{h}(\mathbf{x}) &= \begin{bmatrix} h_1(\mathbf{x}) & h_2(\mathbf{x}) & \cdots & h_{k_{\max}}(\mathbf{x}) \end{bmatrix}^T \end{aligned}$$

いま、重合反応モデル解 $\mathbf{y} = \mathbf{h}$ との残差 $\mathbf{e} = \tilde{\mathbf{y}} - \mathbf{h}$ を対角行列 $\mathbf{W}$ で重み付けした 2 次形式の目的関数 Φ を定義する。

$$\Phi = \sum_n \mathbf{e}^T(n) \mathbf{W} \mathbf{e}(n) \quad (\text{A.2})$$

この目的関数の n 組目を展開する。

$$\Phi(n) = \mathbf{e}(n)^T \mathbf{W} \mathbf{e}(n)$$

$$= \tilde{\mathbf{y}}(n)^T \mathbf{W} \tilde{\mathbf{y}}(n) - \tilde{\mathbf{y}}(n)^T \mathbf{W} \mathbf{h}(n) - \mathbf{h}(n)^T \mathbf{W} \tilde{\mathbf{y}}(n) + \mathbf{h}(n)^T \mathbf{W} \mathbf{h}(n) \quad (\text{A.3})$$

パラメータ推定問題は後述するように非線形最適化問題として定式化できる．それをソルバーで数値的に解く際に，目的関数の勾配 (gradient) $\nabla \Phi$ を与え，効率的に解を得るようにする． n 組目の目的関数の勾配は，重み行列が対角行列なのでつぎようになる．

$$\begin{aligned} \nabla \Phi(n) &= \frac{\partial \Phi(n)}{\partial \boldsymbol{\theta}} = \frac{\partial \mathbf{h}(n)}{\partial \boldsymbol{\theta}} \frac{\partial \Phi(n)}{\partial \mathbf{h}(n)} \\ &= -2 \frac{\partial \mathbf{h}(n)}{\partial \boldsymbol{\theta}} \mathbf{W} \mathbf{e}(n) \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

$\partial \mathbf{h}(n)/\partial \boldsymbol{\theta}$ は直接求められないので，状態変数をパラメータで1次微分したモデル感度行列 (model sensitivity matrix) $\mathbf{S}(n) \equiv (\partial \mathbf{x}(n)/\partial \boldsymbol{\theta})^T$ を導入してつぎのように表わす．

$$\frac{\partial \mathbf{h}(n)}{\partial \boldsymbol{\theta}} = \frac{\partial \mathbf{x}(n)}{\partial \boldsymbol{\theta}} \frac{\partial \mathbf{h}(n)}{\partial \mathbf{x}(n)} = \mathbf{S}(n)^T \frac{\partial \mathbf{h}(n)}{\partial \mathbf{x}(n)} \quad (\text{A.5})$$

このとき

$$\nabla \Phi(n) = -2 \mathbf{S}^T(n) \frac{\partial \mathbf{h}(n)}{\partial \mathbf{x}(n)} \mathbf{W} \mathbf{e}(n) \quad (\text{A.6})$$

となる．目的関数の勾配は $n_{\max}$ 組の実験データのそれぞれの勾配の総和なのでつぎようになる．

$$\nabla \Phi = -2 \sum_n \mathbf{S}^T(n) \frac{\partial \mathbf{h}(n)}{\partial \mathbf{x}(n)} \mathbf{W} \mathbf{e}(n) \quad (\text{A.7})$$

つぎに，モデル感度行列はつぎのように定義され，ベクトル微分 $\partial \mathbf{x}(n)/\partial \boldsymbol{\theta}$ の転置であることに注意する．

$$\begin{aligned} \mathbf{S} &= [S_{ij}] = \left[\frac{\partial x_i}{\partial \theta_j} \right] = \left(\frac{\partial \mathbf{x}(n)}{\partial \boldsymbol{\theta}} \right)^T \\ &= \begin{bmatrix} \frac{\partial x_1}{\partial \theta_1} & \frac{\partial x_1}{\partial \theta_2} & \cdots & \frac{\partial x_1}{\partial \theta_{j_{\max}}} \\ \frac{\partial x_2}{\partial \theta_1} & \frac{\partial x_2}{\partial \theta_2} & \cdots & \frac{\partial x_2}{\partial \theta_{j_{\max}}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial x_{i_{\max}}}{\partial \theta_1} & \frac{\partial x_{i_{\max}}}{\partial \theta_2} & \cdots & \frac{\partial x_{i_{\max}}}{\partial \theta_{j_{\max}}} \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

これは解析的に求まらないので，時間に関する微分方程式で表現する．

$$\frac{dS_{ij}}{dt} = \frac{d}{dt} \left[\frac{\partial x_i}{\partial \theta_j} \right] = \frac{\partial}{\partial \theta_j} \frac{dx_i}{dt} = \frac{\partial}{\partial \theta_j} f_i(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) \quad (\text{A.9})$$

$f_i(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta})$ に関して $\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}$ は共に独立変数である．しかし，重合反応モデルの制約を受け， $\boldsymbol{\theta}$ が変化すると，重合反応モデルでは従属変数である $\mathbf{x}$ が変わる．このため， $\partial f_i/\partial \theta_j$ は θ_j そのものの変化と，それによる $\mathbf{x}$ の変化の両方を考慮しなければならない．そこで，次式のように連鎖律 (chain rule) を適用する．

$$\left. \frac{\partial f_i}{\partial \theta_j} \right|_{\theta \neq j} = \sum_{m=1}^{i_{\max}} \left. \frac{\partial f_i}{\partial x_m} \right|_{x \neq m, \boldsymbol{\theta}} \left. \frac{\partial x_m}{\partial \theta_j} \right|_{\theta \neq j} + \left. \frac{\partial f_i}{\partial \theta_j} \right|_{x, \theta \neq j} \quad (\text{A.10})$$

右辺第1項が θ_j の変化による $\mathbf{x}$ の変化分によるもの，第2項が θ_j そのものの変化分によるものである．ここで，偏微分の右添字はそれらの変数^(注4)が一定であることを表わしている．

そして， $f_x \equiv \partial f/\partial \mathbf{x}$, $f_{\boldsymbol{\theta}} \equiv \partial f/\partial \boldsymbol{\theta}$ とおくと次式のように書くことができる．

$$\frac{\partial}{\partial \theta_j} f_i(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) = \sum_{m=1}^{i_{\max}} f_{x,im} S_{mj} + f_{\theta,ij} \quad (\text{A.11})$$

さらにつぎのように行列を定義する．

$$\mathbf{f}_x = \begin{bmatrix} \frac{\partial f_1}{\partial x_1} & \frac{\partial f_1}{\partial x_2} & \cdots & \frac{\partial f_1}{\partial x_{i_{\max}}} \\ \frac{\partial f_2}{\partial x_1} & \frac{\partial f_2}{\partial x_2} & \cdots & \frac{\partial f_2}{\partial x_{i_{\max}}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial f_{i_{\max}}}{\partial x_1} & \frac{\partial f_{i_{\max}}}{\partial x_2} & \cdots & \frac{\partial f_{i_{\max}}}{\partial x_{i_{\max}}} \end{bmatrix} \quad (\text{A.12})$$

$$\mathbf{f}_{\boldsymbol{\theta}} = \begin{bmatrix} \frac{\partial f_1}{\partial \theta_1} & \frac{\partial f_1}{\partial \theta_2} & \cdots & \frac{\partial f_1}{\partial \theta_{j_{\max}}} \\ \frac{\partial f_2}{\partial \theta_1} & \frac{\partial f_2}{\partial \theta_2} & \cdots & \frac{\partial f_2}{\partial \theta_{j_{\max}}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial f_{i_{\max}}}{\partial \theta_1} & \frac{\partial f_{i_{\max}}}{\partial \theta_2} & \cdots & \frac{\partial f_{i_{\max}}}{\partial \theta_{j_{\max}}} \end{bmatrix} \quad (\text{A.13})$$

これにより，つぎのモデル感度行列の微分方程式を得る．

$$\frac{d\mathbf{S}}{dt} = \mathbf{f}_x \mathbf{S} + \mathbf{f}_{\boldsymbol{\theta}} \quad (\text{A.14})$$

これを重合反応モデルと共に制約に加えると，パラメータ推定問題はつぎの非線形最適化問題として定式化される．さらに，非線形最適化問題のソルバーには，(A.7)式で表わされる目的関数の勾配を与える．

$$\min_{\boldsymbol{\theta}} \Phi = \sum_n \mathbf{e}(n)^T \mathbf{W} \mathbf{e}(n) \quad (\text{A.15})$$

subject to:

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \mathbf{x} = \mathbf{f}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}), & \mathbf{x}(0) = \mathbf{g}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\theta}) \\ \mathbf{y} = \mathbf{h}(\mathbf{x}) \\ \frac{d\mathbf{S}}{dt} = \mathbf{f}_x \mathbf{S} + \mathbf{f}_{\boldsymbol{\theta}}, & \mathbf{S}(0) = \mathbf{0} \end{cases} \quad (\text{A.16})$$

(注4) たとえば $\theta_{\neq j}$ は， θ_j 以外の $\theta_1, 2, \dots, j-1, j+1, \dots, j_{\max}$ が一定であることを表わしている．

A.3 パラメータ推定の実際

ここでは、実際の重合反応モデルの反応速度定数を、実験データに基づきパラメータ推定する。重合反応モデルは、すでに(A.1)式に示したとおりである。2次形式の目的関数 Φ をつぎのように定義する。出力変数が一つなので、重み行列はスカラーで $W = 1$ である。

$$\Phi = \sum_n e(n)^2 \quad (\text{A.17})$$

これは、実験データ $\tilde{y}(n) = \tilde{x}_2(n)$ と推定パラメータに基づく重合反応モデル解 $y(n) = h(n) = x_2(n)$ の残差 $e(n) = \tilde{y}(n) - y(n)$ の2乗和である。ここで、残差ベクトル $e = [e_1 \ e_2 \ \cdots \ e_{n\max}]^T$ である。

推定パラメータの単位変化に対する目的関数の変化を表わす勾配は、(A.7)式からつぎようになる。

$$\nabla \Phi = -2 \sum_n S^T(n) \frac{\partial h}{\partial \mathbf{x}} e(n) \quad (\text{A.18})$$

ここで、モデル感度行列 S の微分方程式は

$$\frac{dS}{dt} = \mathbf{f}_x S + \mathbf{f}_\theta, \quad S = \begin{bmatrix} \frac{\partial x_1}{\partial \theta_1} & \frac{\partial x_1}{\partial \theta_2} \\ \frac{\partial x_2}{\partial \theta_1} & \frac{\partial x_2}{\partial \theta_2} \end{bmatrix} \quad (\text{A.19})$$

であり、 $\mathbf{f}_x, \mathbf{f}_\theta$ はつぎようになる。

$$\mathbf{f}_x = \begin{bmatrix} -\theta_1 & 0 \\ -\frac{\theta_2 x_2(t)}{2\sqrt{x_1(t)}} & -\theta_2 \sqrt{x_1(t)} \end{bmatrix} \quad (\text{A.20})$$

$$\mathbf{f}_\theta = \begin{bmatrix} -x_1(t) & 0 \\ 0 & -\sqrt{x_1(t)} x_2(t) \end{bmatrix} \quad (\text{A.21})$$

また、 $\partial h / \partial \mathbf{x}$ はつぎのとおりである。

$$\frac{\partial h}{\partial \mathbf{x}} = \begin{bmatrix} \frac{\partial h}{\partial x_1} \\ \frac{\partial h}{\partial x_2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} \quad (\text{A.22})$$

このようにして、反応速度定数のパラメータ推定問題は、(A.15)、(A.16)式に示した非線形最適化問題として定式化できる。これは、MATLAB optimization toolbox の非線形最適化ソルバー `fmincon` などにより数値的に解け、数値計算を効率化するため目的関数の勾配を与える。

A.4 数値例

ポリマーの製造処方実験において、反応時間とモノマー濃度の実測値が5組与えられる。パラメータ推定した反応速度定数 $\{k_i = 0.843, k_m = 1.16\}$ である。この重合反応モデルによるモノマー濃度推定値を実測値と比較したものを **Fig. A.1**, **Table A.1** に示した。平均誤差はモノマー濃度で 1.2 wt.% である。

Fig. A.1 Concentration of initiator and monomer using estimated rate constants

Table A.1 comparison of estimated monomer conc. with experimental measurement

time t (h)	experimental $\tilde{x}_m$ (wt.%)	estimated x_m (wt.%)	error (wt.%)
0	100	100	0
1.0	37.2	38.7	1.5
2.0	23.6	20.8	-2.8
3.0	13.8	13.8	0.0
4.0	9.0	10.6	1.6

[著者紹介]

小河 守正 (正会員)

1966年三菱化学（旧三菱化成）入社，2004年まで三菱化学，同年より山武，現在に至る。プロセス制御に関する現場密着型問題解決の業務に従事。93年度システム制御情報学会論文賞，99年度計測自動制御学会論文賞，2003年度計測自動制御学会論文賞武田賞，2009年度計測自動制御学会教育貢献賞，IFAC World Congress 2002 Control Engineering Practice Prize Paper Awardを受賞。京都大学博士（工学）。