不確定性の存在下における分布定数系プロセスの一設計法[†]

— 触媒活性劣化を伴う管形反応器設計への応用 —

西 田 直 矩*・田 崎 栄 一 郎**

* 東京工業大学大学院 東京都目黒区大岡山 2-1-21

** 千代田化工建設(株) 横浜市鶴見区鶴見町 1580

(昭和 46 年 6 月 17 日 受付)

Optimization in a Class of Distributed Parameter Systems under Uncertainty

— Application to Design of Tubular Reactor with Catalyst Deactivation —

Naonori NISHIDA* and Eiichiro TAZAKI**

(* Tokyo Institute of Technology, Graduate School, Meguro-ku, Tokyo)
(** Chiyoda Chemical Engineering and Construction Co., Yokohama)

(Received June 17, 1971)

A performance sensitivity is presented from the viewpoint of system uncertainties for the optimization problems in a class of distributed parameter systems.

Necessary condition for the performance sensitivity which is defined as the maximum decrease in the value of the objective function caused by hypothetical worst parameter variations is derived by application of the maximum principle to a system with distributed parameters.

A design method is derived for obtaining the optimal performance sensitivity by applying the min-max criterion in the game-theoretical sense.

The method is successfully applied to the design and control of a tubular reactor with catalyst deactivation.

It is shown that an optimal reactor which has a low sensitivity to process parameter variations can be designed by the proposed method.

1. ま え が き

通常の最適設計問題において設計されるシステムのパラメータは適当な基準値を用い入力にも不確定性は存在しないとして数式モデルを構成し、最適な操作および設計条件を求めている。しかし対象とするシステムの挙動とこのように構成された数式モデルとが一致することはまれであり、数式モデル中に含まれるパラメータの推定誤差や、プラント運転中に発生する未知の外乱のために、設計時に使用した数式モデルの結果と実際に運転した結果が一致しないことはしばしば起こる。近年システムの最適問題に対する種々の新しい

数学的手法の開発に伴い、システムの最適設計問題を不確定性を考慮して取り扱う研究が活発になってきた。これらの研究をパラメータの変動の不確かさの程度で分類するとつぎのようになると考えられる。

- i) プラントパラメータにおける変動の確率密度関数が与えられている場合
- ii) プラントパラメータの基準値と変動域の上限・下限が与えられている場合
- iii) プラントパラメータの基準値のみ与えられている場合

それぞれの場合に対応してプラントパラメータの変動を考慮したシステム設計法も異なってくる。i) に対しては Kittrell ら¹⁾, Rudd ら²⁾, 高松ら³⁾の研究がある。ii) については Rohrer ら⁴⁾が相対感度につ

[†] 第 10 回計測自動制御学会学術講演会で発表 (昭 46・8)

** (現) 東京理科大学理工学部経営工学科。

いてパラメータの変動域内でその最大値を制御入力について最小にするような方法を提案している。また Takamatsu ら⁵⁾はパラメータの期待値と、その変動域が既知の場合における設計変数の見積り方を提案している。また田崎⁹⁾はプラントパラメータの変動域内における不確実な変化に対する評価関数感度を定義し、その最大値を設計変数に関して最小にする方法を提案している。これを Rohrer らの結果と比較すると Rohrer らの提案はプラントパラメータの変動による結果を制御入力で補償しようとするものであり、この場合設計変数の自由度に対する考慮はない。しかし最適性をゲーム理論的 min-max 基準によっていることは両者とも同一である。iii) に対しては古典的感度解析の立場から感度方程式を利用した方法が Dorato⁶⁾、高松ら³⁾ Pagurek ら⁷⁾、Witsenhausen⁸⁾ によって提案されている。

本研究はプラントパラメータの変動が ii) で与えられた場合において、田崎⁹⁾によって常微分方程式系について提案された方法に基づいて、化学プロセスなどにしばしば表われる分布定数系の最適設計問題に対してこの方法の拡張を試みたものである。すなわち分布系に適用された場合における評価関数感度の満たすべき必要条件を与え、その感度の一計算法を提出した。さらにその有効性を検証する意味でこの方法を触媒の活性劣化を伴う管形反応器の操作設計に応用した。

2. 問題の設定

ここで考えるシステムは、その状態が次の偏微分方程式で表わされる分布定数系とする。

$$\frac{\partial x}{\partial t} = f(x(t, l), y(t, l), u(t, l), d(t, l), p(t, l)), \quad 0 \leq t \leq T \quad (1)$$

$$\frac{\partial y}{\partial t} = h(x(t, l), y(t, l), u(t, l), d(t, l), p(t, l)), \quad 0 \leq l \leq L \quad (2)$$

すなわち x の変化の時間スケールは y の変化のそれと比較すると非常に短く、時間微分項が無視できるような系であり、このような系は化学反応プロセスなどプロセス・システムの挙動を表現するためにしばしば用いられる。

ここで、 $x(t, l) = (x_1(t, l), x_2(t, l), \dots, x_n(t, l))^T$ および $y(t, l) = (y_1(t, l), \dots, y_m(t, l))^T$ は状態変数である。 $u(t, l) = (u_1(t, l), \dots, u_r(t, l))^T$ は分布制御関数、 $d(t, l) = (d_1(t, l), \dots, d_s(t, l))^T$ は分布パラメータ関数、 $p(t, l) = (p_1(t, l), \dots, p_o(t, l))^T$ は分布設計関数を表わす。

またその境界条件は、

$$x(t, 0) = \phi(x^\circ(t), u^\circ(t), d^\circ(t)) \quad (3)$$

$$y(0, l) = \phi(y^\circ(l), p^\circ(l)) \quad (4)$$

とする。ここで $x^\circ(t) = (x_1^\circ(t), \dots, x_n^\circ(t))^T$, $y^\circ(l) = (y_1^\circ(l), \dots, y_m^\circ(l))^T$ はそれぞれ与えられた連続関数、 $u^\circ(t) = (u_1^\circ(t), \dots, u_r^\circ(t))^T$, $d^\circ(t) = (d_1^\circ(t), \dots, d_s^\circ(t))^T$ および $p^\circ(l) = (p_1^\circ(l), \dots, p_o^\circ(l))^T$ はそれぞれ境界制御関数、境界パラメータ関数、境界設計変数を表わす。次にこれらの関数ならびに変数について次の仮定をおく。

i) 関数 f, h はこれを構成する変数について 2 回連続微分可能かつ Lipshitz 条件を満足する。ii) $\bar{u} \triangleq (u, u^\circ)$, $\bar{d} \triangleq (d, d^\circ)$ および $\bar{p} \triangleq (p, p^\circ)$ はそれぞれ凸領域 $\bar{U} \triangleq (U, U^\circ)$, $\bar{D} \triangleq (D, D^\circ)$ および $\bar{P} \triangleq (P, P^\circ)$ 上で定義される区分的連続かつ有界な関数とする。iii) (1) 式および (2) 式の解は境界条件式のもとで $\bar{u}, \bar{d}, \bar{p}$ が決められたとき一意的に決定される。

(3) および (4) 式による解空間において次のはん関数 J を定義し評価関数とする。

$$\Phi = J(x, y, \bar{u}, \bar{d}_N, \bar{p}_N) \quad (5)$$

ここで $\bar{d}_N \triangleq (d_N, d_N^\circ)$, $\bar{p}_N \triangleq (p_N, p_N^\circ)$ はそれぞれ $\bar{d}$ および $\bar{p}$ の適当な基準値を表わす。また (5) 式における評価関数 J はつぎのような形で与えられるものとする。

$$J = \int_0^T G(x(t, L), t) dt \quad (6)$$

G は x, t について 2 回連続微分可能とする。他の形式の評価関数も新しい状態変数を導入することによって同様に取り扱えるので (6) 式で表現しておけば十分である。以上の定義に基づいて次の最適問題を設定する。

“(1), (2), (3), (4) 式に基づいて評価関数 (6) 式を最大にする許容制御入力 $\bar{u} \in \bar{U}$ を求めよ。”

このような問題に対してプラントパラメータの不確実性に基づく評価関数感度 S をつぎのように定義する。

$$S = \max_{\bar{u} \in \bar{U}} \{J(x, y, \bar{u}, \bar{p}_N) - J(x, y, \bar{u}, \bar{d}, \bar{p}_N)\} \quad (7)$$

ここで $\bar{u}^* \triangleq (u, u^\circ)$ はパラメータの変動がなかったとして求められた最適制御入力を表わす。(7) 式を満足する評価関数感度を基準評価関数感度と定義する。次に $\bar{u}$ ならびに基準評価関数感度の満たすべき必要条件を次章において明らかにする。

3. 基準評価関数感度の満たすべき必要条件

(7) 式はつぎの 2 つの問題に書きかえられる。

$$\text{問題 1. } S_1 \triangleq \max_{\bar{u} \in \bar{U}} J(x, y, \bar{u}, 0, \bar{p}_N) \quad (8)$$

$$\text{問題 2. } S_2 \triangleq \min_{\hat{d} \in \tilde{D}} J(x, y, \hat{u}, \hat{d}, \tilde{p}_N) \quad (9)$$

ただし問題 2 において $\hat{u} \triangleq (u^*, u^\circ)$ は問題 1 の解として与えられるものとし、 $\tilde{p}_N$ は適当に与えられた設計変数 $\tilde{p}$ の基準値である。

問題 1 の解に対する必要条件 Egorov^{(13), (14)}, Degtyarev ら⁽¹⁰⁾ ならびに Volin ら⁽¹¹⁾ によって与えられた分布系の最大原理に基づいて最適解 $\hat{u} \triangleq (u^*, u^\circ)$ の必要条件を与える。

系の状態方程式および境界条件は (1), (2), (3) および (4) 式において $\hat{d} \triangleq (d, d^\circ) \equiv 0$, $\tilde{p} \triangleq (\tilde{p}, \tilde{p}^\circ) \equiv \tilde{p}_N$ として与えられる。ここで $\tilde{p}_N$ は適当に与えられたもので定数である。ここで次のスカラー関数 (Hamilton 関数) H を定義することによって (1), (2) 式に対する補助方程式はそれぞれ (11), (12) 式のようになる。

$$H = \langle \lambda, f \rangle + \langle \mu, h \rangle \quad (10)$$

$$\frac{\partial \lambda(t, l)}{\partial l} = -\frac{\partial H}{\partial x} \quad (11)$$

$$\frac{\partial \mu(t, l)}{\partial t} = \frac{\partial H}{\partial y} \quad (12)$$

またこれらの方程式の境界条件は、

$$\lambda(t, L) = \frac{\partial G}{\partial x(t, L)} \quad (13)$$

$$\mu(T, l) = 0 \quad (14)$$

となる。これより $\hat{u}$ の必要条件は方程式 (1)~(4), (11)~(14) を満足するものとで次のように与えられる⁽¹⁰⁾。

$$H^\circ[\lambda(t, 0), u^*(t)] (=) \max_{u^\circ \in U^\circ} H^\circ[\lambda(t, 0), u^\circ] \quad (15)$$

$$H[x, y, \lambda, \mu, u^*(t, l)] (=) \max_{u \in U} H[x, y, \lambda, \mu, u] \quad (16)$$

$$\begin{aligned} & \int_0^L H[x, y, \lambda, \mu, u^*(t, l)] dl \\ & (=) \max_{u \in U} \int_0^L H[x, y, \lambda, \mu, u] dl \end{aligned} \quad (17)$$

ここで (=) はほとんどいたるところで等号が成立することを表わす。また (15) 式において H° は境界条件に対するスカラー関数であり次式で与えられる。

$$H^\circ = \langle \lambda(t, 0), u^\circ \rangle \quad (18)$$

(17) 式は分布制御関数 $u(t, l)$ が l 軸方向に関してパラメータ化され、したがって集中化されて最適制御が行なわれる場合を表わしている⁽¹¹⁾。

問題 2 の解に対する必要条件 問題 1 と同様に分布系の最大原理が適用できる。状態方程式およびその境界条件、スカラー関数および補助方程式は問題 1 の場合と形式的に等しいが、各関数中の $\hat{u}$, $\tilde{p}$ はそれぞれ定数 $\hat{u}$, $\tilde{p}_N$ で与えられる。補助方程式の境界条件はつぎのように与えられる。

$$\lambda(t, L) = -\frac{\partial G}{\partial x(t, L)} \quad (19)$$

$$\mu(T, l) = 0 \quad (20)$$

$\hat{d} \triangleq (d^*, d^\circ)$ の必要条件は方程式 (1)~(4), (11), (12), (19), (20) を満たすもとでつぎのように与えられる。

$$H^\circ[\lambda(t, 0), d^*(t)] (=) \max_{d^\circ \in D^\circ} H^\circ[\lambda(t, 0), d^\circ] \quad (21)$$

$$\begin{aligned} & H[x, y, \lambda, \mu, d^*(t, l)] (=) \max_{d \in D} H[x, y, \lambda, \mu, d] \\ & \quad (22) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \int_0^L H[x, y, \lambda, \mu, d^*(t, l)] dl \\ & (=) \max_{d \in D} \int_0^L H[x, y, \lambda, \mu, d] dl \end{aligned} \quad (23)$$

$$\text{ここで, } H^\circ = \langle \lambda(t, 0), d^\circ \rangle \quad (24)$$

とする。

4. 不確定性を考慮したシステム設計法

ここでは前章において定義された評価関数感度に基づいて、プラントパラメータの変動がある有限な範囲ではまったく不確定に起こると仮定し、システムをゲーム理論的 min-max 基準により設計する方法について述べ、分布定数系における最小評価関数感度の必要条件ならびに、その一計算アルゴリズムを与える。

ここで最適評価関数感度 $\hat{S}$ は次のように表わされるものとする。

$$\hat{S} = \min_{\tilde{p} \in \tilde{P}} \max_{\hat{d} \in \hat{D}} \{J(x, y, \hat{u}, \tilde{p}) - J(x, y, \hat{u}, \hat{d}, \tilde{p})\} \quad (25)$$

$\hat{u} \triangleq (u^*, u^\circ)$ はパラメータの変動がなかったとして与えられた最適制御入力である。

これはつぎのように書き直すことができる。

$$\hat{S} = \min_{\tilde{p} \in \tilde{P}} \{J(x, y, \hat{u}, 0, \tilde{p}) - \min_{\hat{d} \in \hat{D}} J(x, y, \hat{u}, \hat{d}, \tilde{p})\} \quad (26)$$

$$= \min_{\tilde{p} \in \tilde{P}} \{J(x, y, \hat{u}, 0, \tilde{p}) - J(x, y, \hat{u}, \hat{d}, \tilde{p})\} \quad (27)$$

(27) 式において $\hat{u}, \hat{d}$ は適当に与えられた $\tilde{p} \triangleq (p, p^\circ)$ に対する問題 1 および問題 2 の解としてそれぞれ与えられる。したがって (27) 式で表わされる問題に対する束縛条件および評価関数はつぎのようになる。

すなわち束縛条件は問題 1 において求められた制御入力 $\hat{u}$ を代入した状態方程式、ならびに問題 2 において、 $\hat{u} = \hat{u}$ として求められたプラントパラメータ $\hat{d}$ を代入した状態方程式を同時に考えればよい。この結果状態方程式の次元は $2(n+m)$ となる。また評価関数 J_S は、

$$J_S = J(x^1, y^1, \hat{u}, 0, \tilde{p}) - J(x^2, y^2, \hat{u}, \hat{d}, \tilde{p})$$

$$= \int_0^T \{G^1(x^1(t, L), t^1) - G^2(x^2(t, L), t^2)\} dt \quad (28)$$

となる。ここで問題 1, 2 と同様に分布系の最大原理によって最小評価関数感度 $\bar{S}^*$ の必要条件を導く。スカラー関数, 補助方程式およびその境界条件は次のように与えられる。なお (28) 式および次の式で上付添字 1, 2 はそれぞれ問題 1, 問題 2 における変数であることを示す。

$$\begin{aligned} & H[x^1, x^2, y^1, y^2, \lambda^1, \lambda^2, \mu^1, \mu^2, p] \\ &= H^1[x^1, y^1, \lambda^1, \mu^1, p] + H^2[x^2, y^2, \lambda^2, \mu^2, p] \\ &= \sum_{i=1}^2 (\langle \lambda^i, f^i \rangle + \langle \mu^i, h^i \rangle) \end{aligned} \quad (29)$$

$$\frac{\partial \lambda^1}{\partial t} = -\frac{\partial H^1}{\partial x^1} \quad (30)$$

$$\frac{\partial \lambda^2}{\partial t} = -\frac{\partial H^2}{\partial x^2} \quad (31)$$

$$\frac{\partial \mu^1}{\partial t} = -\frac{\partial H^1}{\partial y^1} \quad (32)$$

$$\frac{\partial \mu^2}{\partial t} = -\frac{\partial H^2}{\partial y^2} \quad (33)$$

$$\lambda^1(t, L) = -\frac{\partial G^1}{\partial x^1(t, L)} \quad (34)$$

$$\lambda^2(t, L) = -\frac{\partial G^2}{\partial x^2(t, L)} \quad (35)$$

$$\mu^1(T, l) = \mu^2(T, l) = 0 \quad (36)$$

これより $p \triangleq (p^*, p^*)$ が最適解であるための必要条件は上述の $2(n+m)$ 次の状態方程式ならびに補助方程式 (30)~(36) を満足するもつとでつぎのように与えられる。

$$H^0[\mu^1(0, l), \mu^2(0, l), p^*(l)] (=) \max_{p^* \in P^0} H^0[\mu^1, \mu^2, p^*] \quad (37)$$

$$\int_0^T [x, y, \lambda, \mu, p^*(t, l)] dt (=) \max_{p \in P} \int_0^T H[x, y, \lambda, \mu, p] dt \quad (38)$$

ここで境界条件に対するスカラー関数 H^0 は,

$$H^0 = \langle \mu^1(0, l), p^*(l) \rangle + \langle \mu^2(0, l), p^*(l) \rangle \quad (39)$$

となる。

以上の結果から次のような関数空間山登り法に基づく最小評価関数感度 $\bar{S}^*$ を与える計算アルゴリズムが考えられる。

step 1: 第 k 番目 ($k=0, 1, 2, \dots$) における設計変数の推定値 $\bar{p}_k$ とする ($k=0$ は初期値であり許容設計変数を与えるものとする)。

step 2: $\bar{p}_N = \bar{p}_k$ のもとで問題 1 を解き $\hat{u}_k$ を求める。

step 3: $\bar{p}_N = \bar{p}_k$, $\hat{u} = \hat{u}_k$ のもとで問題 2 を解き $\hat{d}_k$

を求める。

step 4: $\hat{u} = \hat{u}_k$, $\hat{d} = \hat{d}_k$ を用いてさきにのべた $2(n+m)$ 次の状態方程式および補助方程式 (30)~(36) 式を満たしつつ,

$$p_{(k+1)} = p_{(k)} + \varepsilon_P \int_0^T \left(\frac{\partial H}{\partial p} \right)_{(k)} dt \quad (40)$$

$$p^0_{(k+1)} = p^0_{(k)} + \varepsilon_{P^0} \left(\frac{\partial H^0}{\partial p^0} \right)_{(k)} \quad (41)$$

から $(k+1)$ 番目の設計変数 p を求める。step 2~step 4 の過程を適当な終了基準が満たされるまで繰り返す。(40), (41) 式で $\varepsilon_P, \varepsilon_{P^0} > 0$ はステップ幅パラメータである。

なお step 2~step 4 において, $\hat{u}_k, \hat{d}_k$ はそれぞれ適当な関数空間山登り法, あるいは共役こう配法などによって求めることができる。

5. 触媒劣化を伴う充填層反応器の操作設計への応用

次に本方法の有効性を検証する意味で, これをプロセスに不確実性が存在する触媒活性劣化を伴う充填層反応装置の反応操作設計へ適用する。触媒の活性劣化を伴う化学反応系の最適化については, これまでにも Szepe ら¹⁵⁾, Paynter¹⁶⁾, Ogunye ら^{17), 18)} によって報告されているが, いずれも反応プロセスのパラメータは基準値をとるものとして最適設計, 最適制御が論議されている。特に Ogunye らは原料の供給温度を制御入力として取扱い, 活性劣化を最小にすることを試みているが, これとても不確実性に対する直接的考慮ははられていない。

ここでは 2 重管形充填層反応器で $A \xrightarrow{k_1} B \xrightarrow{k_2} C$ なる発熱逐次反応がおきるとき, 触媒寿命時間内, $0 \leq t \leq T$ で目的生成物 B の時間平均生成量を最大にするように外側管内を流れる熱交換用媒体の温度 $u(t)$ を制御する問題を考える。ここで近似的に管の軸方向に関する熱交換用媒体の温度こう配は無視できるものとする。またかく反応次数は 1 次とし, 触媒の劣化速度は温度および触媒活性の関数として表わされるとする。設計変数は触媒層軸方向の触媒の初期活性分布, $p^0(l)$ とした。ところで触媒層入口物質温度はプラント操作中にその基準値のまわりで不確定に変動することは非常に多い。このときその変動域の上・下限が既知であることを利用して, 目的生成物 B の時間平均成量の触媒層入口反応物質温度の変動による影響をできるだけ少なくするような設計変数, $p^0(l)$, を求めることとする。

層内の流れはピストン流れとし, 主反応速度にくら

べ活性劣化速度は通常、非常に遅いので、主反応に対する擬定常の仮定が成立するものとする。

操作設計の基礎式は次のようになる。

$$\frac{\partial x_1}{\partial l} = -k_1 x_1 y_1 \quad (42 \cdot A)$$

$$\frac{\partial x_2}{\partial l} = (k_1 x_1 - k_2 x_2) y_1 \quad (42 \cdot B)$$

$$\frac{\partial x_3}{\partial l} = (b_1 k_1 x_1 + b_2 k_2 x_2) y_1 + \frac{1}{\alpha} [u(t) - x_3] \quad (43 \cdot C)$$

$$\frac{\partial y}{\partial l} = -k_c y_1 \quad (43)$$

境界条件は、

$$x_1(t, 0) = x_{10}, x_2(t, 0) = x_{20}, x_3(t, 0) = x_{30} + d^\circ(t) \quad (44)$$

$$y_1(0, l) = p^\circ(l) \quad (45)$$

ただし、

$$0 \leq p^\circ(l) \leq 1, l \in [0, L], d^L \leq d^\circ(t) \leq d^U, t \in [0, T] \quad (46)$$

ここで x_1, x_2 はそれぞれ反応物質 A, B の濃度, x_3 は反応物質の温度, y は触媒の活性, $d^\circ(t)$ は入口物質温度の不確定な変動を表わす。また $k_i = k_{i0} \exp(-E_i/Rx_3)$ ($i=1, 2$) は反応速度定数, $b_i = (-\Delta H_i/Cp\rho)$ ($i=1, 2$) は x_i の 1 gram-mole あたりの反応熱で, Cp および ρ はそれぞれ比熱, 密度を表わす。 α は熱交換定数, $k_c = k_{c0} \exp(-Ec/Rx_3)$ は触媒劣化速度定数である。

(6) 式の評価関数および (25) 式の最小評価関数感度はそれぞれ次のようになる。

$$J = \int_0^T x_2(t, L) dt \quad (47)$$

$$\bar{S} = \min_{p^\circ \in P^\circ} \max_{d^\circ \in D^\circ} \{J(u^*, 0, p^\circ) - J(u^*, d^\circ, p^\circ)\} \quad (48)$$

なおシステム方程式および境界条件から推察されるように初期総充填量 $P_T = \int_0^L p^\circ(l) dl$ に拘束がない場合、自明な解として、すべての $l \in [0, L]$ に対して $p^\circ(l) = 0$ となることが考えられる。これはプロセス本来の目的として意味がないので、ここでは P_T をあらかじめ与えておきその P_T のもとで最小感度を求めるものとする。したがって等号束縛条件、

$$\int_0^L p^\circ(l) dl - P_T = 0 \quad (49)$$

が付加されることになる。

次の H 関数を最大にする条件のもとで、

$$\begin{aligned} H = & [-k_1 x_1 y_1] \lambda_1 + [(k_1 x_1 - k_2 x_2) y_1] \lambda_2 \\ & + [(b_1 k_1 x_1 + b_2 k_2 x_2) y_1] \\ & + \frac{1}{\alpha} (u(t) - x_3) \lambda_3 + [-k_c y_1] \mu_1 \end{aligned}$$

前章で提出された計算法により (30)~(36) 式の補助方程式および境界条件はつぎのようになる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \lambda_1^i}{\partial l} = & k_1^i y_1^i (\lambda_1^i - \lambda_2^i - b \lambda_3^i), \quad \frac{\partial \lambda_2^i}{\partial l} \\ = & k_2^i y_1^i (\lambda_2^i - b \lambda_3^i) \\ \frac{\partial \lambda_3^i}{\partial l} = & \frac{1}{R x_3^{i2}} [E_1 k_1^i x_1^i y_1^i (\lambda_1^i - \lambda_2^i - b \lambda_3^i) \\ & + E_2 k_2^i x_2^i y_1^i (\lambda_2^i - b \lambda_3^i)] \\ & + \frac{\lambda_3^i}{\alpha} + \frac{E_c}{R x_3^{i2}} k_c^i y_1^i \mu_1^i \quad (i=1, 2) \quad (50) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mu_1^i}{\partial t} = & k_1^i x_1^i (\lambda_1^i - \lambda_2^i - b \lambda_3^i) + R_2^i x_2^i (\lambda_2^i - b \lambda_3^i) \\ & + k_c^i \mu_1^i, \quad (i=1, 2) \quad (51) \end{aligned}$$

$$\lambda_1^1(t, L) = \lambda_1^2(t, L) = 0, \quad \lambda_2^1(t, L) = -1, \quad \lambda_2^2(t, L) = 1, \quad \lambda_3^1(t, L) = \lambda_3^2(t, L) = 0, \quad \mu_1^1(T, l) = \mu_1^2(T, l) = 0 \quad (52)$$

また (41) 式の右辺の一部はここではつぎのように与えられる。

$$\left(\frac{\partial H^\circ}{\partial p^\circ} \right)_{(k)} = \mu_1^1(0, l) + \mu_1^2(0, l) + \eta \quad (53)$$

ここで η は等号束縛条件 (49) 式に対する Lagrange 乗数である。

次に数値計算の結果について述べる。まず計算に使用した諸定数の値を Table 1 に掲げる¹²⁾。ここで頻

Table 1

$k_{10} = 0.535 \times 10^{11}$	$E_1 = 18000$
$k_{20} = 0.461 \times 10^{18}$	$E_2 = 30000$
$k_{c0} = 1.805 \times 10^{17}$	$E_c = 28000$
$b_1 = 100, b_2 = -50, \alpha = 3, R = 2$	
$x_{10} = 0.95, x_{20} = 0.05, x_{30} = 332^\circ K$	
$d^L = -5, d^U = 5, L = 10, T = 1$	

度因子 k_{i0} , 活性化エネルギー E_i , 反応熱/mole b_i 熱交換定数 α および原料の基準供給温度 x_{30} の値はそれぞれ Bilous ら¹²⁾ によって報告されている反応例によった。また原料の入口温度における変化を反応器の運転における実際上の可能性より、その基準値から $\pm 5^\circ$ の範囲でとった。また触媒総量 P_T が 10.0, 8.5, 8.0, 7.5 の場合について最小評価関数感度の値を比較したものが Table 2 である。これより総量 P_T が減少す

Table 2

P_T	$S^*(=J(u^*, 0, p^*) - J(u^*, d^*, p^*))$	η
10.0	0.084(=0.651-0.567)	—
8.5	0.037(=0.627-0.590)	7.42
8.0	0.028(=0.615-0.587)	5.40
7.5	0.022(=0.600-0.578)	3.15

ると最小感度 S^* も小さくなっていくことがわかり、特に P_T の値が大きな所ほど初期触媒量の減少に対して S^* の変化が激しいことは実際の設計において注目され

る。Fig. 1 にそれぞれの触媒量に対する最適触媒充填分布, $p^*(l)$ を示した。これらの解は (53) 式から推察されるようにいずれも Bang-Bang 形になっている。Fig. 2 にパラメータ変動の最悪値に対する反応管出口における目的生成物 B の時間変化, $x_2(t, L)$ を示した。

Fig. 1 Optimal design of catalyst activity distribution

Fig. 2 Exit extent of reaction ($x_2(t, L)$) vs. catalyst life

Fig. 3 Optimal control and worst disturbance

また Fig. 3 は $P_T=8.5$ における熱交換用媒体の最適温度, $u(t)$ および入口物質温度の最悪変動, $d^*(t)$ を示したものである。Fig. 4 および Fig. 5 はそれぞれ

Fig. 4 Catalyst activity distribution at the initial and terminal points of life time : case 1 ($P_T=10.0$)

Fig. 5 Catalyst activity distribution at the initial and terminal points of life time : case 2 ($P_T=8.5$)

$P_T=10$ (この場合触媒分布における自由度はない。)と $P_T=8.5$ で最適設計された場合の初期(設計時)ならびに触媒寿命終了時における活性分布を示したものである。 $P_T=8.5$ のときは外乱が存在しない場合と、それが最悪にはいった場合の差はわずかであり、このような設計の有効性が推察される。なお $P_T=8.0$, $P_T=7.5$ に対してもほぼ同様の結果が得られた。

次に初期活性触媒単位量当たりの目的生成物の収量を比較したものが Table 3 である。これよりプラン

Table 3

P_T	J/P_T	
	$d^*=0$	$d^*=d^*$
10.0	0.0651	0.0567
8.5	0.0738	0.0694
8.0	0.0769	0.0734
7.5	0.0800	0.0771

トパラメータの変動が存在しない場合においても、その収量は、完全につめた状態 ($P_T=10$) よりもむしろ適当にぬいた方が有利なことがわかる。この傾向はパラメータ変動のある場合にいっそう増大する。

しかし一般に、反応器設計にあたっては、任意時刻の反応器出口濃度に対する制約(製品仕様)が存在することを考慮すれば、このことからだけでその優位性を決定することは、かならずしも適切ではないが、十

分考慮に価することは推察される。

6. 考 察

本方法の成立する理論的背景として、プラントパラメータの変動はまったく不確定に起こると仮定しているが、実際の問題においてその変動が確率過程として記述できる場合は十分存在する。しかし確率過程としてとらえた場合、一般にその計算は非常に困難となり、特に分布定数系においてこの傾向は著しいと考えられる。したがって実用的にはプラントパラメータの変動領域を適切に設定し、本方法を適用することにより数値計算上、大幅に容易になり、その結果は実際問題においてもかなり有効であろうと期待される。

次に数値計算上の問題点について Rohrer ら⁴⁾の方法と比較すると、そこでは最適解を変分法に基づいて求めており、状態変数の次元を N とすれば、 $2N$ 次元の連立方程式を解くことになる。いっぽう、本方法においてはさきに述べたように結局 $4N$ 次元の方程式を解く必要がある。しかし (30)~(36) 式から明らかに k 回目の推定値 $\hat{p}_k$ に対して上付添字 1 の場合と 2 の場合はそれぞれ別個に、 $2(n+m)$ 次元の方程式を解けばよい。したがって数値計算的には、両者は等価であると考えてもさしつかえなかろう。

7. 結 論

分布定数系の最適設計問題においてプラントパラメータの変動の基準値とその上・下限が与えられた場合に対する一設計法を示し、その必要条件ならびに計算法を与えた。また、この方法を触媒活性劣化を伴う充填層反応器の操作設計に適用した結果、パラメータの変動に対して鈍感なシステムを設計することができることを実証し、実用的にも有効なことを明らかにした。なお Rohrer ら⁴⁾の相対感度、本研究における評価関数感度など、不確定性の影響を測る感度関数の実用上の有効性に対する比較・検討は今後に残された問題と考えられる。本論文中の数値計算は、東北大学 (NEAC-2200-500)、東京大学 (HITAC-5020 E)、京都大学 (FACOM-230-60) の大形計算機を利用し、その一部を行なった。

参 考 文 献

- 1) J. R. Kittrell & C. C. Watson : Don't Overdesign Process Equipment, Chem. Eng'g Sci. **62**, p.72 (1966)
- 2) D. F. Rudd & C. C. Watson : Strategy of Process Eng'g, Chap. 11-15, John Wiley & Sons (1968)
- 3) 高松・橋本・塩谷 : パラメータの不確かさを考慮したプロセスの設計余裕に対する一考察, システムと制御 **15-2**, 139/147 (1971)
- 4) R. A. Rohrer and M. Sobral Jr. : Sensitivity Consideration in Optimal System Design, IEEE AC, **AC-10-1**, 43/48 (1965)
- 5) T. Takamatsu, I. Hashimoto & H. Ohono : Optimal Design of Chemical Process from the Viewpoint of Sensitivity Analysis, I & EC Pro. Design and Develop. **9-3**, 368/379 (1970)
- 6) P. Dorato : On Sensitivity in Optimal Control Systems, IEEE AC, **AC-8-3**, 256/257 (1963)
- 7) B. Pagurek : Sensitivity of the Performance of Optimal Control Systems to Plant Parameter Variations, IEEE AC, **AC-10**, p.178 (1965)
- 8) H. H. Witsenhausen : On the Sensitivity of Optimal Control Systems, IEEE AC, **AC-10**, p.495 (1965)
- 9) 田崎 : 最適制御問題における評価関数感度に関する一提案, 第12回自動制御連合講演会前刷, 119/120 (1969)
- 10) G. L. Degtyarev and T. K. Siradetdinov : Optimal Control of One-Dimensional Processes with Distributed Parameters, Auto. Remot., **28-11**, 1642/1650 (1967)
- 11) Y. M. Volin and G. M. Ostrovskii : A Method of Successive Approximations for Calculating Optimal Modes of Some Distributed Parameter Systems, Avtomat. i Telemekh. **26-7**, 1197/1204 (1965)
- 12) O. Bilous and N. R. Amundson : Optimum Temperature Gradients in Tubular Reactors, Chem. Eng'g Sci., **5**, 81/92 (1956)
- 13) A. I. Egorov : Optimal Processes in Systems Containing Distributed Parameter Plants I, Avtomat. Telemekh. **26-6**, p.977 (1965)
- 14) A. I. Egorov : Optimal Processes in Systems Containing Distributed Parameter Plants II, ibid, **26-7**, p.1188 (1965)
- 15) S. Szepe and O. Levenspiel : Optimal Temperature Policies for Reactors Subject to Catalyst Deactivation I, Chem. Eng'g Sci. **23**, p.881 (1968)
- 16) J. D. Paynter : The Optimal Control and Design of a Multibed Deactivating Catalyst System, Chem. Eng'g Sci. **24**, p.1277 (1969)
- 17) A. F. Ogunye and W. H. Ray : Optimal Control Policies for Tubular Reactors Experiencing Catalyst Decay I, Single Bed Reactors, AIChE J. **17**, p.43 (1971)
- 18) A. F. Ogunye and W. H. Ray : Optimal Control Policies for Tubular Reactors Experiencing Catalyst Decay II, Multiple Bed Semiregenerative Reactors AIChE J. **17**, p.365 (1971)