UDC 66.012

槽型流通反応系の最適化制御

石　田　博　章

Optimalizing Control of Input Flowrates in a Series of Continuous-Flow Type Chemical Reactor

Hiroaki Ishida

The present paper deals with the results of the author's studies in which the theory of optimal process of L. S. Pontryagin was applied for optimalizing control of input flowrates in a series of continuous-flow type chemical reaction system.

The optimal criterion in these studies was to maximize the profit obtainable by this system, and the studies were made with regard to input flowrates of each of the reactants.

It was found that the optimal manipulated variables must lie on the boundary of the control domain. If this domain were polyhedron, the bang-bang control system must be adopted, except some singular cases, whatever the type of the rate equation might be.

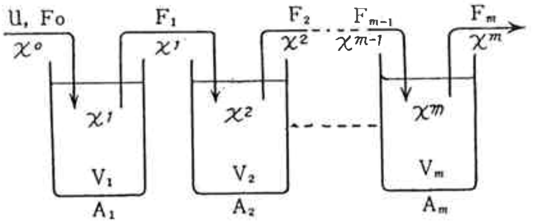
1. まえがき

既設のプラントから得られる利益を最大にするには，どのような運転をなすべきかということは，装置工業における最も重要な課題の一つである。現実の複雑なプラント全体についてこの問題と真向から取り組むには，きわめて多くの時間と費用を必要とし，しかも理論的，技術的に未解決な点が多い。そこで問題を単純化し，ここでは化学プラントの主体をなす反応装置のうち，反応槽を使って連続的に反応を起させる場合，原料の流入量をどのように操作すれば利益を最大にすることができるか，という問題を理論的に取り扱った。

その際，最近注目されているポントリヤーギンの最大原理を適用し，一応の結論を得たのでこれを報告する。

2. 系の微分方程式

m 個の反応槽 A_j $(j=1, \cdots, m)$ を右図のように直列に配した流通反応系を考える。各槽 A_j の内部は均一であるものとすれば，反応にあずかる物質 M_i $(i=1, \cdots, n)$ の槽内および槽出口における濃度は等しいとみなせるから，これを x_i^j (mol/l) とすると，槽 A_j の入口における濃度は x_i^{j-1} で表わされる。槽 A_j 内において l_j 個の素反応が生ずるものとし，それらの化学反応式を次のように表わす。



$$\sum_{i=1}^{n} \gamma_{ih}^{j} M_i = 0 \quad (i=1, \cdots, m), \ (h=1, \cdots, l_j) \tag{1}$$

ここに γ_{ih}^j は槽 A_j について物質 M_i の h 番目の素反応における化学量論的係数であって，物質 M_i が生成物であると考えられるとき正の値をとるものとする。(1)式で表わされる反応に対する反応速度式を

$$\bar{r}_{ih}^{j}(x_1^j, \cdots, x_n^j; t) = \gamma_{ih}^j k_h^j(t) \bar{r}_h^j(x_1^j, \cdots, x_n^j)$$
$$(i=1, \cdots, n), \ (j=1, \cdots, m), \ (h=1, \cdots, l_j) \tag{2}$$

と表わすことができる。ここに k_h^j は反応速度定数で一般に時刻 t の関数である。従って槽 A_j において物質 M_i の濃度は反応によって単位時間に

* 1964年4月日本機械学会第41期通常総会にて発表

$$\overline{R}_i^j\ (x_1^j, \cdots, x_n^j\,;\,t) = \sum_{h=1}^{lj} \overline{r}_{ih}^j\ (x_1^j, \cdots, x_n^j\,;\,t)$$

$$(i=1, \cdots, n),\ (j=1, \cdots, m) \tag{3}$$

だけ増加する。槽 A_j 内における全物質の容積を $V_j\ (l)$ とし，その出口における総流量を $F_j\ (l/min)$ とすれば，この槽内における物質 M_i の濃度が単位時間に変化する割合は次の式で表わされる。

$$\dot{x}_i^j = \overline{R}_i^j + \frac{1}{V_j}\{F_{j-1} x_i^{j-1} - (F_j + \dot{V}_j) x_i^j\}$$

$$(i=1, \cdots, n),\ (j=1, \cdots, m) \tag{4}$$

ところで物質 M_i の密度を $d_i\ (gr/l)$, 分子量を $m_i\ (gr/mol)$ とするとき $\alpha_i = d_i / m_i$ は純物質 M_i の示すモル濃度に等しい。槽 A_j において，物質 M_i の体積が反応により単位時間に変化する割合は $V_j \overline{R}_i^j / \alpha_i$ で与えられるから

$$\overline{S}_j = \sum_{i=1}^{n} \frac{\overline{R}_i^j}{\alpha_i},\quad \overline{Q}_j = V_j \overline{S}_j - \dot{V}_j,\quad (j=1, \cdots, m) \tag{5}$$

とおくと，出口における総流量は次の式で表わされる。

$$F_j = F_0 + \sum_{\xi=1}^{j} \overline{Q}_\xi \qquad (j=1, \cdots, m) \tag{6}$$

純物質 $M_i\ (i=1, \cdots, n)$ を混合しても，その体積が変らないものとすれば，純物質 M_i の槽 A_1 への流入量を $u_i\ (l/min)$ とするとき

$$F_0 = \sum_{i=1}^{n} u_i,\quad F_0 x_i^0 = \alpha_i u_i \qquad (i=1, \cdots, n) \tag{7}$$

である。(6), (7)両式を用いると(4)式は次のようになる。

$$\left.\begin{aligned} \dot{x}_i^1 &= \frac{1}{V_1}(\alpha_i u_i - x_i^1 \sum_{\eta=1}^{n} u_\eta) + \overline{R}_i^1 - \overline{S}_1 x_i^1 \\ \dot{x}_i^j &= \frac{1}{V_j}(\sum_{\eta=1}^{n} u_\eta + \sum_{\xi=1}^{j-1} \overline{Q}_\xi)(x_i^{j-1} - x_i^j) + \overline{R}_i^j - \overline{S}_j x_i^j \end{aligned}\right\}$$

$$(j=2, \cdots, m)$$

$$(i=1, \cdots, n) \tag{8}$$

ところで次の関係式

$$\sum_{i=1}^{n} \frac{x_i^j}{\alpha_i} = 1 \qquad (j=0, 1, \cdots, m) \tag{9}$$

を用いて $\overline{R}_i^j, \overline{S}_j, \overline{Q}_j$ より $x_n^j\ (j=1, \cdots, m)$ を消去すると，それぞれ

$$\left.\begin{aligned} &R_i^j(x_1^j, \cdots, x_{n-1}^j\,;\,t) = \overline{R}_i^j\ (x_1^j, \cdots, x_n^j\,;\,t), \\ &\qquad\qquad (i=1, \cdots, n) \\ &Sj(x_1^j, \cdots, x_{n-1}^j\,;\,t) = \overline{S}_j\ (x_1^j, \cdots, x_n^j\,;\,t) \\ &Q_j\ (x_1^j, \cdots, x_{n-1}^j\,;\,t) = \overline{Q}_j\ (x_1^j, \cdots, x_n^j\,;\,t) \end{aligned}\right\}$$

$$(j=1, \cdots, m) \tag{10}$$

と書き直されるから，系を表わす微分方程式は結局

$$\left.\begin{aligned} \dot{x}_i^1 &= \frac{1}{V_1}(\alpha_i u_i - x_i^1 \sum_{\eta=1}^{n} u_\eta) + R_i^1 - S_1 x_i^1 \equiv f_i^1(x^1, u, t) \\ \dot{x}_i^j &= \frac{1}{V_j}(\sum_{\eta=1}^{n} u_\eta + \sum_{\xi=1}^{j-1} Q_\xi)(x_i^{j-1} - x_i^j) + R_i^j - S_j x_i^j \\ &\equiv f_i^j(x^1, \cdots, x^j, u, t)\ (j=2, \cdots, m) \end{aligned}\right\}$$

$$(i=1, \cdots, n-1) \tag{11}$$

となる。

3. 最適基準

次に最適基準として，与えられた時刻 T_0 から T に至るまでに，系の生み出す総合利益を最大にすることを考える。総合利益は最終反応槽 A_m より単位時間に出る物質の価格と，初反応槽 A_1 に単位時間に入る物質の価格との差に，各槽における物質の価格の単位時間あたりの増加量を加えたものを，時間に関して積分したものに等しいとする。即ち純物質 M_i の価格を $a_i\ (yen/mol)$ とし，最終反応槽出口における価格は，分離に要する費用や回収率などを考慮して $\mu_i^m a_i\ (\mu_i^m \leqq 1)$ とおき，更に槽 A_j 内における価格を $\overline{\mu}_i^j a_i\ (\overline{\mu}_i^j \leqq 1)$ とおくことにすれば，総合利益は

$$\begin{aligned} J_p = \int_{T0}^{T} \sum_{i=1}^{n} a_i \{\mu_i^m F_m x_i^m - F_0 x_i^0 + \sum_{j=1}^{m} \overline{\mu}_i^j\ (\dot{V}_j x_i^j \\ + V_j \dot{x}_i^j)\}\, dt = \int_{T0}^{T} \sum_{i=1}^{n} a_i \Big[\{\mu_i^m x_i^m - \overline{\mu}_i^1 x_i^1 \\ + \sum_{j=2}^{m} \overline{\mu}_i^j\ (x_i^{j-1} - x_i^j)\} \sum_{\eta=1}^{n} u_\eta - (1 - \overline{\mu}_i^1)\alpha_i u_i \\ + \sum_{j=1}^{m} \{V_j \overline{\mu}_i^j \overline{R}_i^j + (\mu_i^m x_i^m - \overline{\mu}_i^j x_i^j)\ \overline{Q}_j\} \\ + \sum_{j=2}^{m} \overline{\mu}_i^j\ (x_i^{j-1} - x_i^j) \sum_{\xi=1}^{j-1} \overline{Q}_\xi \Big] dt \end{aligned} \tag{12}$$

となるから，上式から x_n を消去し

$$\left.\begin{aligned} &\frac{1}{\alpha_i}(\mu_i^m \alpha_i a_i - \mu_n^m \alpha_n a_n) = b_i^m \\ &\frac{1}{\alpha_i}(\overline{\mu}_i^j \alpha_i a_i - \overline{\mu}_n^j \alpha_n a_n) = \overline{b}_i^j,\ (j = 1, \cdots, m) \end{aligned}\right\}$$

$$(i=1, \cdots, n) \tag{13}$$

とおけば(12)式は次のようになる。

$$J_p=\int_{T0}^{T}\Big[\{((\mu_n^m-\bar{\mu}_n^1)\alpha_n a_n+\sum_{j=1}^{n-1}(b_i^m x_i^m-\bar{b}_i^1 x_i^1$$

$$+\sum_{j=2}^{m}\bar{b}_i^j(x_i^{j-1}-x_i^j))\}\sum_{\eta=1}^{n}u_\eta-\sum_{i=1}^{n}(1-\bar{\mu}_i^1)\alpha_i a_i u_i$$

$$+\sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{m}a_i V_j\bar{\mu}_i^j R_i^j+\alpha_n a_n\sum_{j=1}^{m}(\mu_n^m-\bar{\mu}_n^j)Q_j$$

$$+\sum_{i=1}^{n-1}\Big\{\sum_{j=1}^{m}(b_i^m x_i^m-\bar{b}_i^j x_i^j)Q_j+\sum_{j=2}^{m}\bar{b}_i^j(x_i^{j-1}-x_i^j)$$

$$\sum_{\xi=1}^{j-1}Q_\xi\Big\}\Big]dt\equiv\int_{T0}^{T}f_0(x^1,\cdots,x^m,u,t)\,dt \qquad (14)$$

4. 最 大 原 理

ポントリャーギンの最大原理によれば(11)式で表わされる系において，(14) 式を最大にする u が存在するならば，それは次のような形の関数 $H(x_1^1,\cdots,x_{n-1}^1;\cdots;x_1^m,\cdots,x_{n-1}^m:p_1^1,\cdots,p_{n-1}^1;\cdots;p_1^m,\cdots,p_{n-1}^m:u_1,\cdots,u_n:t)$ を u だけの関数と考えたときに，これを最小にする u のうちに存在するはずである。

$$H(x,p,u,t)=\sum_{i=1}^{n-1}\sum_{j=1}^{m}p_i^j f_i^j-f_0=\sum_{i=1}^{n}C_i u_i+W \qquad (15)$$

ただし

$$C_i(x,p,t)\equiv D_i-\sum_{l=1}^{n-1}\Big\{b_l^m x_l^m+\frac{\psi_l^1}{V_1}x_l^1-\sum_{j=2}^{m}\frac{\psi_l^j}{V_j}$$

$$(x_l^{j-1}-x_l^i)\Big\}\qquad(i=1,\cdots,n) \qquad (16)$$

$$D_i(p,t)\equiv\alpha_i\Big(a_i+\frac{\psi_i^1}{V_1}\Big)-\mu_n^m\alpha_n a_n(i=1,\cdots,n)$$

$$(\psi_n^1=0) \qquad (17)$$

$$W(x,p,t)\equiv\sum_{i=1}^{n-1}\sum_{j=1}^{m}\Big\{(R_i^j-S_j x_i^j)\psi_i^j-b_i^m x_i^m Q_j$$

$$-\bar{b}_i^j x_i^j\dot{V}_j\Big\}-\alpha_n a_n\sum_{j=1}^{m}(\mu_n^m Q_j+\bar{\mu}_n^j\dot{V}_j)$$

$$+\sum_{i=1}^{n-1}\sum_{j=2}^{m}\frac{\psi_i^j}{V_j}(x_i^{j-1}-x_i^j)\sum_{\xi=1}^{j-1}Q_\xi \qquad (18)$$

$$\psi_i^j\equiv p_i^j-\bar{b}_i^j V_j\quad(i=1,\cdots,n),\ (j=1,\cdots,m),$$

$$(p_n^j=\psi_n^j=0) \qquad (19)$$

とおき，p_i^j は次の式を満足する助変数である。

$$\dot{p}_i^j=-\sum_{l=1}^{n-1}\sum_{k=1}^{m}p_l^k\frac{\partial f_l^k}{\partial x_i^j}-\frac{\partial f_0}{\partial x_i^j}\qquad(i=1,\cdots,n),$$

$$(j=1,\cdots,m) \qquad (20)$$

各瞬間において u に関して(15)式を最小にするには，各瞬間において

$$Z\equiv H-W=\sum_{i=1}^{n}C_i u_i \qquad (21)$$

を u に関して最小にすればよい。そこで

$$\left.\begin{array}{l} z\equiv\dfrac{Z}{\Delta},\quad c_i\equiv\dfrac{C_i}{\Delta}\quad(i=1,\cdots,n)\\ \Delta\equiv\pm\sqrt{\sum_{i=1}^{n}C_i^2}\ (\text{符号は}\ z\geqslant0\ \text{となるようにとる}) \end{array}\right\}(22)$$

とおけば n 次元空間における超平面を表わすヘッセの標準形

$$z=\sum_{i=1}^{n}c_i u_i \qquad (23)$$

が得られる。z は原点からこの超平面に下した垂線の長さを表わし，c_i はこの垂線の方向余弦を表わす。uは一般に有界な閉集合をなし，これを U で表わすと，Z が負となり得ないときは Δ は常に正であるから(21)式を最小にするには (23) 式を最小にすればよく，しかも U は原点を内点としては含まないから，最適な u は U の境界上にある。また Z が負となり得るときは，Z の最小値は負であるから，これに対応する Δ も負となり，従って (21) 式を最小にするには，今度は (23) 式を最大にすればよく，最適な u はやはり U の境界上にある。結局最適な u は常に U の境界上にあることになる。このことは関数 H が u に関して線型となっていることによる。U が多面体をなすときは，シンギュラとなる場合を除けば，最適な u として常にこの多面体の頂点の値のみをとることができ，従ってオンオフ制御系が構成される。ここでシンギュラとは，ある区間において最大原理から最適な u を定め得ない場合であって，この区間で (23) 式で表わされる超平面が多面体 U のどれかの辺を含んでいるときのことである。シンギュラとなるかどうかは，具体的な問題にあたって，いちいち検討してみなければならない。

5. 操作量の制限

U の具体的な形としては

$$0\leqslant u_i\leqslant\hat{u}_i\ (i=1,\cdots,n),\ 0\leqslant F_m\leqslant\hat{F}_m \qquad (24)$$

が同時に成立する領域が考えられる。ここで$\hat{u}_i$；$\hat{F}_m$ は定数とする。上式の前半は，例えば反応槽列の前のプロセスに掛る制限によるものであり，後半は反応槽列の後のプロセスに掛かる制限によるものと見ることができよう。しかしながら F_m は u ばかりでなく x と t との関数であるから，(24) 式による領域 U は時間と共に変化することになる。この困難を避けるため U として

(24) 式の代りに

$$0 \leqslant u_i \leqslant \hat{u}_i \ (i=1, \cdots, n), \quad 0 \leqslant F_0 \leqslant \hat{F}_0 \tag{25}$$

が同時に成立する領域をとることにする。ここに $\hat{F}_0$ は定数である。定容反応で V_j $(j=1, \cdots, m)$ が一定のときは $F_m=F_0$ であるから (23) 式は (25) 式と同値となる。以下では更に簡単のため

$$\hat{F}_0 \leqslant \hat{u}_i \quad (i=1, \cdots, n) \tag{26}$$

の場合のみを考えることにする。

6. 最適系の微分方程式

このとき U は原点 O および各座標軸上に原点から正の方向に $\hat{F}_0$ だけ隔った点 $P_i = (\overbrace{0, \cdots, 0, \hat{F}_0}^{i}, 0, \cdots, 0)$, $(i=1, \cdots, n)$ を頂点とする n 次元の単体をなすから，最適な操作量はシンギュラな場合を除けば，この単体の頂点のどれかをとり，従って1つの原料をフルに供給するか，もしくは何も供給しないのが最適であって，同時に2種以上の原料を供給することはない。実際，ある適当な区間 $t_{r+1} \leqslant t \leqslant t_r$ では (15) 式おける u_i の各係数 C_i のうち少なくともどれか1つは常に最小となっているはずであるから， その係数を C_{mr} とすれば， 区間 $t_{r+1} < t \leqslant t_r$ において $C_{mr}>0$ のときは原点 O を， また $C_{mr}<0$ のときは頂点 P_{mr} を選べば， これは u に関して (15) 式を最小にする。もし区間 $t_{r+1} \leqslant t \leqslant t_r$ において $C_{mr}=0$ が常に成立しているか， あるいは常に最小となっている係数が2つまたはそれ以上同時に存在する場合にはシンギュラの問題となる。これについては個々の場合に考えることとし，ここでは取扱わない。そこで $C_{mr}>0$ のとき $\hat{F}_0^*=0$, $C_{mr}<0$ のとき $\hat{F}_0^*=\hat{F}_0$ であるような $\hat{F}_0^*$ を用いると (15) 式の最小値は次式のようになる。

$$K \equiv \min_{u \in U} H = C_{mr} \hat{F}_0^* + W \quad (t_{r+1} \leqslant t \leqslant t_r) \tag{27}$$

ただし $r=0, 1, \cdots, s-1$ とし，$t_0=T$, $t_s=T_0$ とする。これより最適系の微分方程式として，次の諸式が得られる。

$$\dot{p}_i^j = -\frac{\partial K}{\partial x_i^j} = G_j \left(\frac{\psi_i^j}{V_j} - \frac{\psi_i^{j+1}}{V_{j+1}}\right) - \sum_{l=1}^{n-1} \psi_l^j \frac{\partial R_l^j}{\partial x_i^j} + \frac{\dot{V}_j}{V_j} p_i^j$$
$$+ \left\{\sum_{l=1}^{n-1} \left(x_l^j \frac{\psi_l^j}{V_j} + b_l^m x_l^m\right) - \sum_{k=j+1}^{m} \frac{\psi_i}{V_k}\left(x_i^{k-1} - x_i^k\right)\right.$$
$$\left. + \alpha_n a_n \mu_n^m\right\} \frac{\partial Q_j}{\partial x_i^j}$$
$$(i=1, \cdots, n-1), \ (j=1, \cdots, m-1) \tag{28}$$

$$\dot{p}_i^m = -\frac{\partial K}{\partial x_i^m} = G_m \left(b_i^m + \frac{\psi_i^m}{V_m}\right) - \sum_{l=1}^{n-1} \psi_l^m \frac{\partial R_l^m}{\partial x_i^m} + \frac{\dot{V}_m}{V_m} p_i^m$$
$$+ \left\{\sum_{l=1}^{n-1} \left(b_l^m + \frac{\psi_l^m}{V_m}\right) x_l^m + \frac{\psi_i^m}{V_m} x_i^m + \alpha_n a_n \mu_n^m\right\} \frac{\partial Q_m}{\partial x_i^m}$$
$$(i=1, \cdots, n-1) \tag{29}$$

$$\dot{x}_i^1 = \frac{\partial K}{\partial p_i^1} = \frac{G_0}{V_1}\left(\alpha_i \delta_{imr} - x_i^1\right) + R_i^1 - S_1 x_i^1$$
$$(t_{r+1} \leqslant t \leqslant t_r) \quad (i=1, \cdots, n-1) \tag{30}$$

$$\dot{x}_i^j = \frac{\partial K}{\partial p_i^j} = \frac{G_{j-1}}{V_j}\left(x_i^{j-1} - x_i^j\right) + R_i^j - S_j x_i^j$$
$$(i=1, \cdots, n-1) \quad (j=2, \cdots, m) \tag{31}$$

ただし次のようにおくものとする。

$$G_j \equiv \hat{F}_0^* + \sum_{\xi=1}^{j} Q_\xi \quad (j=1, \cdots, m) \ ; \ G_0 \equiv \hat{F}_0^* \tag{32}$$

(28)～(31)の諸式を適当な初期条件のもとに解けば，これより最適な操作量や，そのトラジェクトリを求めることができる。なお(16)式で表わされる係数の大小関係を比較する際，第2項はどの係数に対しても同じ値を持っているから(17)式で表わされる第1項の大小のみを比較すればよい。

7. 単一反応槽の場合

このときは $m=1$ であるから各槽に関する量を区別するための添字を省くことにすると，系の微分方程式は，(11)式に対応して次のようになる。

$$\dot{x}_i = \frac{1}{V}\left(\alpha_i u_i - x_i \sum_{\eta=1}^{n} u_\eta\right) + R_i - S x_i \equiv f_i(x, u, t)$$
$$(i=1, \cdots, n-1) \tag{33}$$

また利益式は(14)式より

$$J_p = \int_{T_0}^{T} \left[\left\{(\mu_n - \bar{\mu}_n)\alpha_n a_n + \sum_{i=1}^{n-1} (b_i - \bar{b}_i) x_i\right\}\left(\sum_{\eta=1}^{n} u_\eta + Q\right)\right.$$
$$\left. - \sum_{i=1}^{n} (1-\bar{\mu}_i)\alpha_i a_i u_i + V \sum_{i=1}^{n} \bar{\mu}_i a_i R_i\right] dt$$
$$\equiv \int_{T_0}^{T} f_0(x, u, t)\, dt \tag{34}$$

最小にすべき関数 H は(15)式において次のようにおいたものに等しい。

$$C_i(x, p, t) \equiv D_i - \sum_{l=1}^{n-1} \left(b_l + \frac{\psi_l}{V}\right) x_l \ (i=1, \cdots, n) \tag{35}$$

$$D_i(p, t) \equiv \alpha_i\left(a_i + \frac{\psi_i}{V}\right) - \mu_n \alpha_n a_n$$
$$(i=1, \cdots, n), \ (\psi_n=0) \tag{36}$$

$$W(x, p, t) \equiv \sum_{i=1}^{n-1} \{(R_i - S x_i)\psi_i - (b_i Q + \bar{b}_i \dot{V}) x_i\}$$
$$- \alpha_n a_n (\mu_n Q + \bar{\mu}_n \dot{V}) \tag{37}$$

$$\psi_i(p_i, t) \equiv p_i - \bar{b}_i V \quad (i=1, \cdots, n) \quad (p_n=\psi_n=0) \tag{38}$$

これより，最適系の微分方程式として

$$\dot{p}_i=(\hat{F}_0^*+Q)\left(b_i+\frac{\psi_i}{V}\right)-\sum_{l=1}^{n-1}\psi_l\frac{\partial R_l}{\partial x_i}+\frac{\dot{V}p_i}{V}$$

$$+\left\{\sum_{l=1}^{n-1}\left(b_l+\frac{\psi_l}{V}\right)x_l+\frac{\psi_i}{V}x_i+\alpha_n a_n\mu_n\right\}\frac{\partial Q}{\partial x_i}$$

$$(i=1,\ \cdots,\ n-1) \qquad (39)$$

$$\dot{x}_i=\frac{\hat{F}_0^*}{V}(\alpha_i\delta_{imr}-x_i)+R_i-Sx_i \quad (i=1,\ \cdots n-1),$$

$$(t_{r+1}\leqq t\leqq t_r) \qquad (40)$$

が得られる。以後は単一反応槽の場合のみを考えることにする。

8. 定容反応で槽内物質体積一定の場合

このときは $S=0$ で $\dot{V}=0$ であるから $Q=0$ となる。そして更に槽内における物質の価格の変化を無視することにすれば $\bar{\mu}_i=0$ $(i=1,\ \cdots,\ n)$ とおけるから $\bar{b}_i=0$ $(i=1,\ \cdots,\ n)$ となる。従って $\psi_i=p_i$ が得られる。これらの関係を用いると(33)〜(37)の諸式はそれぞれ次のようになる。

$$\dot{x}_i=\frac{1}{V}\left(\alpha_iu_i-x_i\sum_{\eta=1}^{n}u_\eta\right)+R_i \quad (i=1,\ \cdots,\ n-1) \qquad (41)$$

$$J_p=\int_{T_0}^{T}\left\{\left(\mu_na_n\alpha_n+\sum_{i=1}^{n-1}b_ix_i\right)\sum_{\eta=1}^{n}u_\eta-\sum_{i=1}^{n}\alpha_ia_iu_i\right\}dt \qquad (42)$$

$$C_i=D_i-\sum_{l=1}^{n-1}\left(b_l+\frac{p_l}{V}\right)x_l \qquad (i=1,\ \cdots,\ n) \qquad (43)$$

$$D_i=\alpha_i\left(a_i+\frac{p_i}{V}\right)-\mu_n\alpha_na_n \quad (i=1,\ \cdots,\ n),\ (p_n=0) \qquad (44)$$

$$W=\sum_{i=1}^{n-1}R_ip_i \qquad (45)$$

これより，最適系の微分方程式は

$$\dot{p}_i=\hat{F}_0^*\left(b_i+\frac{p_i}{V}\right)-\sum_{l=1}^{n-1}p_l\frac{\partial R_l}{\partial x_i} \quad (i=1,\ \cdots,\ n-1) \qquad (46)$$

$$\dot{x}_i=\frac{\hat{F}_0^*}{V}(\alpha_i\delta_{imr}-x_i)+R_i \qquad (i=1,\ \cdots,\ n-1),$$

$$(t_{r+1}\leqq t\leqq t_r) \qquad (47)$$

となる。以後は定容反応で槽内物質の体積一定の場合のみを取扱うこととし，槽内物質の価格変動も無視することにする。

9. 1次不可逆反応

一般の化学反応を取扱うのは困難であるから，次のような1次不可逆反応について考えることにする。

$$M_1\rightarrow\gamma_2M_2+\gamma_3M_3+\cdots+\gamma_nM_n \qquad (48)$$

そしてこの場合，反応速度式が次のように表わされたものとする。

$$R_i=k\gamma_i\,x_1\ (i=1,\ \cdots,\ n),\ (\gamma_1=-1),\ (k>0) \qquad (49)$$

反応速度定数 k は一般には時間の関数であるが，ここでは一定値を有するものとする。なお定容反応では $S=0$ であるから(49)式より

$$\sum_{i=1}^{n}\frac{\gamma_i}{\alpha_i}=0 \qquad (50)$$

が成立しなければならない。(49)式を(46)，(47)両式に代入すれば

$$\dot{p}_i=\hat{F}_0^*\left(b_i+\frac{p_i}{V}\right)-k\delta_{i1}\sum_{l=1}^{n-1}\gamma_lp_l \quad (i=1,\ \cdots,\ n-1) \qquad (51)$$

$$\dot{x}_i=\frac{\hat{F}_0^*}{V}(\alpha_i\delta_{imr}-x_i)+k\gamma_ix_1 \quad (i=1,\ \cdots,\ n-1),$$

$$(t_{r+1}\leqq t\leqq t_r) \qquad (52)$$

となるから

$$\lambda^*=\frac{\hat{F}_0^*}{V},\ \lambda_1^*=\lambda^*+k,\ \rho^*=\frac{\lambda^*}{\lambda_1^*},\ B=-\sum_{l=1}^{n-1}\gamma_lb_l \qquad (53)$$

$$q_1=-\frac{1}{V}\sum_{l=1}^{n-1}\gamma_lp_l,\ q_i=\frac{p_i}{V} \quad (i=2,\ \cdots,\ n-1) \qquad (54)$$

とおいて変数を p から q に変換すると(51)式は次のようになる。

$$\dot{q}_1=\lambda_1^*(\rho^*B+q_1),\ \dot{q}_i=\lambda^*(b_i+q_i) \quad (i=2,\ \cdots,\ n-1) \qquad (55)$$

そこで更に

$$\lambda=\frac{\hat{F}_0}{V},\ \lambda_1=\lambda+k,\ \rho=\frac{\lambda}{\lambda_1},\ \bar{t}_j-t=\bar{\tau}_j$$

$$(j=0,\ 1,\ \cdots,\ 2\bar{s}) \qquad (56)$$

$$q_i(\bar{t}_j)=q_i^j \quad (i=1,\ \cdots,\ n-1),\ (j=0,\ 1,\ \cdots,\ 2\bar{s}) \qquad (57)$$

とおき

$$\hat{F}_0^*=\hat{F}_0\ (\bar{t}_{2l+1}\leqq t\leqq\bar{t}_{2l}),\ \hat{F}_0^*=0\ (\bar{t}_{2l+2}\leqq t\leqq\bar{t}_{2l+1}) \qquad (58)$$

(ただし $l=0,\ 1,\ \cdots,\ \bar{s}-1$ とし，$\bar{t}_0=T$ または $\bar{t}_1=T$，$\bar{t}_{2\bar{s}-1}=T_0$ または $\bar{t}_{2\bar{s}}=T_0$ とする) が成立しているものとして(55)式をこれらの区間に対して解くと次のようになる。

$$\left.\begin{array}{l} q_1=-\rho B+(q_1^{2l}+\rho B)exp(-\lambda_1\bar{\tau}_{2l}) \\ q_i=-b_i+(q_i^{2l}+b_i)exp(-\lambda\bar{\tau}_{2l})\ (i=2,\ \cdots,\ n-1) \end{array}\right\}$$

$$(\bar{t}_{2l+1}\leqq t\leqq\bar{t}_{2l}) \qquad (59)$$

$$q_1=q_1^{2l+1}\,exp(-k\bar{\tau}_{2l+1})\ ;\ q_i=q_i^{2l+1}\ (i=2,\ \cdots,\ n-1),$$

$$(\bar{t}_{2l+2}\leqq t\leqq\bar{t}_{2l+1}) \qquad (60)$$

次に

$$\beta_{imr}=\delta_{1mr}\alpha_1+\delta_{imr}\frac{\alpha_i}{\gamma_i} \quad (i=2,\ \cdots,\ n-1) \qquad (61)$$

$$y_1=x_1\ ;\ y_i=x_1+\frac{x_i}{\gamma_i}\quad (i=2,\ \cdots,\ n-1) \tag{62}$$

とおいて変数を x から y に変換すると(52)式は次式のようになる。

$$\left.\begin{aligned} &\dot{y}_1=\lambda_1^*(\delta_{1mr}\rho^*\alpha_1-y_1)\\ &\dot{y}_i=\lambda^*(\beta_{imr}-y_i)\quad (i=2,\ \cdots,\ n-1)\\ &\quad (t_{r+1}\leqq t\leqq t_r)\end{aligned}\right\} \tag{63}$$

そこで，境界条件として

$$y_i(\bar{t}_j)=y_i^j\quad (i=1,\ \cdots,\ n-1),\ (j=0,\ 1,\ \cdots,\ 2\bar{s}) \tag{64}$$

とおき，(ただし $\bar{t}_j=T$ のときは $y_j(\bar{t}_i)=y_i^T$ とおくものとする)

$$t_{r+1}\leqq\bar{t}_{2l+2}<\bar{t}_{2l}\leqq t_r \tag{65}$$

が成立つものとして(58)式で表わされる区間に対して，(63)式を解くと，

$$\left.\begin{aligned} &y_1=\delta_{1mr}\,\rho\alpha_1+(y_1^{2l}-\delta_{1mr}\,\rho\alpha_1)exp(\lambda_1\,\bar{\tau}_{2l})\\ &y_i=\beta_{imr}+(y_i^{2l}-\beta_{imr})\,exp(\lambda\bar{\tau}_{2l},)(i=2,\ \cdots,\ n-1)\\ &\quad (\bar{t}_{2l+1}\leqq t\leqq\bar{t}_{2l})\end{aligned}\right\} \tag{66}$$

$$\begin{aligned} &y_1=y_1^{2l+1}exp(k\bar{\tau}_{2l+1})\ ;\ y_i=y_i^{2l+1},\ (i=2,\ \cdots,\ n-1)\\ &\quad (\bar{t}_{2l+2}\leqq t\leqq\bar{t}_{2l+1})\end{aligned} \tag{67}$$

が得られる。これにより区間 $\bar{t}_{2l+1}\leqq t\leqq\bar{t}_{2l}$ におけるトラジェクトリは

$$\frac{y_i-\beta_{imr}}{y_i^{2l}-\beta_{imr}}=\frac{y_j-\beta_{jmr}}{y_j^{2l}-\beta_{jmr}}=\left(\frac{y_1-\delta_{1mr}\rho\alpha_1}{y_1^{2l}-\delta_{1mr}\rho\alpha_1}\right)^{\rho}$$
$$(i,\ j=2,\ \cdots,\ n-1) \tag{68}$$

によって表わすことができる。

なお(43)，(44)式を q および y を用いて書き直すと次のようになる。

$$\begin{aligned} &C_i=D_i-(B+q_1)y_1-\sum_{j=2}^{n-1}\gamma_j(b_j+q_j)\,y_j\ (i=1,\ \cdots,\ n)\\ &D_i=\alpha_i\,(a_i+q_i)-\mu_n a_n\alpha_n+\delta_{i1}\alpha_1\sum_{j=2}^{n-1}\gamma_j q_j\end{aligned} \tag{69}$$

$$(i=1,\ \cdots,\ n),\ (q_n=0) \tag{70}$$

M_i と M_j との切換時刻 ($C_i=C_j=C_{mr}$ の正負にかかわらず，このようにいうことにする) は，次式より求めることができる。

$$\begin{aligned} &g_{ij}(t)=D_i-D_j=\alpha_i(a_i+q_i)-\alpha_j(a_j+q_j)\\ &+(\delta_{i1}-\delta_{j1})\alpha_1\sum_{l=2}^{n-1}\gamma_l q_l=0\\ &\qquad (i,\ j=1,\ \cdots,\ n),\ (i\neq j),\ (q_n=0)\end{aligned} \tag{71}$$

(9) 式の関係を (62) 式および $S=0$ の条件を使って y の式に書き直すと

$$\sum_{i=2}^{n}\frac{\gamma_i\,y_i}{\alpha_i}=1 \tag{72}$$

が得られる。

ところで $b_i\geqq 0$ $(i=2,\ \cdots,\ n-1)$ となるように物質 M_n を選ぶことは，常に可能であるからこのように選んだものとする。最終時刻 T における q_i の値を q_i^T とするとき (59)，(60) 両式から分かるように $b_i+q_i^T>0$ が成立する i の組を S_1 とするとこのような i に対しては $T_0\leqq t\leqq T$ において常に $b_i+q_i>0$ $(i\epsilon S_1)$ となっているから，

$$A_{ij}=\alpha_i\,(a_i-b_i)-\alpha_j\,(a_j-b_j),\ (i,\ j=1,\ \cdots,n)$$
$$(b_n=0) \tag{73}$$

とおくとき，ある $i\epsilon S_1$ に関して $A_{in}\geqq 0$ が成立する場合には g_{in} は常に正となっており，このような i の組を $S_2\subset S_1\subset\{2,,\cdots,n-1\}$ とすると M_i $(i\epsilon S_2)$ を供給することはない。もしすべての $i\epsilon S_2=S_1=\{2,\ \cdots,\ n-1\}$ について $A_{in}\geqq 0$ であるならば，切替は M_1 と M_n との間でのみ行なわれる。もし $0<\mu_i=\mu_n\leqq 1$ $(i\epsilon S_1)$ が成立つ i があれば，その i については $A_{in}\geqq 0$ が常に成立つから M_i を供給することはない。またもしすべての $i\epsilon S_1=\{2,\ \cdots,\ n-1\}$ について $0<\mu_2=\mu_3=\cdots=\mu_n\leqq 1$ が成立つときは，切替は M_1 と M_n との間でのみ行なわれる。なお最終時刻 T における濃度 $x_i\,(T)$ $(i=2,\ \cdots,\ n-1)$ を指定しない場合には $q_i^T=0$ $(i=2,\ \cdots,\ n-1)$ となるから $b_i\neq 0$ $(i=2,\cdots,\ n-1)$ に対しては明らかに $A_{in}\geqq 0$ がすべての i $(2,\ \cdots,\ n-1)$ について成立つから切替は M_1 と M_n との間でのみ行なわれる。また $b_i=0$ となる i が存在するなら，その i については g_{in} が一定値となるから，その正負に応じ M_i または M_n を供給することがない。

逆に $b_i+q_i^T<0$ が成立する i の組 S'_1 に対しては，全区間 $T_0\leqq t\leqq T$ において常に $b_i+q_i<0$ $(i\epsilon S'_1)$ となっているから，ある $i\epsilon S'_1$ に関して $A_{in}\leqq 0$ が成立する場合には g_{in} は常に負となっているから M_n を供給することはない。

更に，もし $i\epsilon S_1,\ j\epsilon S'_1$ に関して $A_{ij}\geqq 0$ が成立するならば g_{ij} は常に正であるから $\max_{j\epsilon S1'}A_{ij}=A_{im}\geqq 0$ が成立する M_i $(i\epsilon S_1)$ についてはこれを供給することがない。

10. シンギュラ・コントロール

ある区間内で常に $C_i=C_j=C_{min}\leqq 0$ あるいは C_i

$= C_{min} = 0$ が成立しているような i, j または i が存在するならば，この区間内で関数 H を最小にする操作量を一義的に定めることはできない。このような場合はシンギュラであって，また別の観点から最適な操作量を求めなければならない。ここでは，前節の1次不可逆反応に対するシンギュラ・コントロールについて考察する。

今区間 $t_a \leqslant t \leqslant t_b$ において，ある1組の $i, j \epsilon \{1, \cdots, n\}$ に対して $C_i = C_j = C_{min} \leqslant 0$ が常に成立していたものとする。このとき常に $g_{ij}=0$ となっているから，これを何回か（微分可能なだけ）時間 t で微分したものは，またこの区間で常に零となっている。そこで

$$\frac{F_0}{V} = \varphi, \quad k\left(1+\frac{\alpha_1 B}{A_{1j}}\right)=\nu_j \quad (A_{1j} \neq 0,\ j \epsilon \{2, \cdots, n\}) \tag{74}$$

とおくことにすれば次の諸式が得られる。

$$\dot{g}_{ij} = -A_{ij}\varphi + \delta_{i1}\alpha_1 kq_1 = 0 \quad (i \epsilon \{1, \cdots, n\},\ j \epsilon \{2, \cdots, n\}) \tag{75}$$

$$\left.\begin{array}{ll} \ddot{g}_{1j} = \alpha_1 kB\varphi = 0 & (A_{1j} = 0 \text{のとき}) \\ \ddot{g}_{1j} = A_{1j}(\varphi^2 + \nu_j\varphi - \dot{\varphi}) = 0 & (A_{1j} \neq 0 \text{のとき}) \end{array}\right\} \quad (j \epsilon \{2, \cdots, n\}) \tag{76}$$

従って，もし区間 $t_a \leqslant t \leqslant t_b$ において $C_i = C_j = C_{min} < 0$ が常に成立っているときは $\varphi = \lambda$ であるから，$A_{ij} \neq 0$ $(i, j \epsilon \{2, \cdots, n\})$ のときはこの i, j に関しシンギュラとなることはない。また $A_{1j} = 0$ で $B \neq 0$ のときあるいは $A_{1j} \neq 0$ で $\nu_j + \lambda \neq 0$ $(i \epsilon \{2, \cdots, n\})$ のときは $1, j$ に関しシンギュラとなることはない。$A_{ij} = 0$ $(i, j \epsilon \{2, \cdots, n\})$ のときはシンギュラとなるが $t_a \leqslant t \leqslant t_b$ における利益 $\triangle I_p$ はこの場合

$$\triangle J_p = \int_{t_a}^{t_b}\Big[\hat{F}_0\Big\{\sum_{k=2}^{n-1} b_k\gamma_k\big(y_k^b\, exp(\lambda\tau_b) - y_1^b\, exp(\lambda_1\tau_b)\big) - (1-\mu_i)\alpha_i a_i - \alpha_i a_i\, exp(\lambda\tau_b)\Big\} + (\alpha_i a_i - \alpha_j a_j)\Big(u_j + \lambda e^{-\lambda t}\int_t^{t_b} u_j e^{\lambda t} dt\Big)\Big]dt \tag{77}$$

（ただし $\tau_b = t_b - t$，$y_k^b = y_k(t_b)$ $(k=1, \cdots, n-1)$ とおく）

となるから $\triangle J_p$ を最大にするには $\alpha_i a_i - \alpha_j a_j > 0$ のときは $\dot{u}_i = 0, u_j = \hat{F}_0$ とすればよく，逆に $\alpha_i a_i - \alpha_j a_j < 0$ のときは $u_i = \hat{F}_0$，$u_j = 0$ とすればよいことが分る。$\alpha_i a_i - \alpha_j a_j = 0$ のときは u_i（または u_j）は一義的に定まらないが $0 \leqslant u_i \leqslant \hat{F}_0$ の範囲でどの値を用いてもよい。

次に区間 $t_c \leqslant t \leqslant t_d$ において常に $C_i = C_{min} = 0$ が成立するような i がただ1つ存在したものとする。即ち

$$C_i = D_i - \sum_{l=1}^{n-1}\left(b_l + \frac{P_l}{V}\right)x_l = 0 \quad (i \epsilon \{1, \cdots, n\}) \tag{78}$$

前と同様にこれを何回か（微分可能なだけ）時間 t で微分したものは，やはりこの区間で零となっているから

$$\dot{C}_i = k(Bx_1 + \delta_{i1}\alpha_1 q_1) = 0 \quad (i \epsilon \{1, \cdots, n\}) \tag{79}$$

$$\ddot{C}_1 = 2kB\dot{v}_1 = 2kB\{(\alpha_1 - x_1)\varphi - kx_1\} = 0 \tag{80}$$

これより $B \neq 0$ のときは $i \epsilon \{2, \cdots, n\}$ についてシンギュラとなることはない。また C_1 についてシンギュラとなるには $\dot{x}_1 = 0$ 即ち $x_1 = x_1^{td}$ が成立しなければならない。この場合の操作量は次のようになる。

$$u = \left(\frac{Vkx_1}{\alpha_1 - x_1},\ 0, \cdots, 0\right) \tag{81}$$

（ただし $Vkx_1/(\alpha_1 - x_1) \leqslant \hat{F}$。であるものとする。もしそうでなければ，シンギュラとはならない。）逆に(81)式で表わされる値を操作量として選べば，一旦 $C_1 = \dot{C}_1 = 0$ となる瞬間が存在するならば，それ以後は常に $C_1 = \dot{C}_1 = \ddot{C}_1 = 0$ が成立していることが容易に確かめられる。従ってこのようなシンギュラ・コントロールが成立する。

更に，区間 $t_a \leqslant t_a' \leqslant t \leqslant t_b' \leqslant t_b$ において，常に $C_i = C_j = C_{min} = 0$ が成立するような $i \epsilon \{1, \cdots, n\}$，$j \epsilon \{2, \cdots, n\}$ が存在したものとすると，

$$\dot{C}_i = k(Bx_1 + \delta_{i1}\alpha_1 q_1) - \frac{A_{ij}}{V}u_j = 0 \quad (i \epsilon \{1, \cdots, n\},\ j \epsilon \{2, \cdots, n\}) \tag{82}$$

$$\ddot{C}_1 = \ddot{C}_j = \frac{A_{1j}}{V}\{\dot{u}_1 + (\nu_j + \varphi)u_1\} = 0 \quad (j \epsilon \{2, \cdots, n\},\ A_{1j} \neq 0) \tag{83}$$

が得られる。（ただし u_1 はこの区間において，少なくとも1回微分可能であるものと仮定する。）(82) 式によれば $B \neq 0$ とするとき $A_{ij}=0$ $(i \epsilon \{1, \cdots, n\}, j \epsilon \{2, \cdots, n\})$ であるとこのようなシンギュラは起らない。また $A_{ij} \neq 0$ $(i, j \epsilon \{2, \cdots, n\})$ のときは (75) 式によれば操作量は原点をとることとなるが (82) 式によれば $B \neq 0$ に対してこのようなことは起り得ない。従ってやはりこのようなシンギュラは起らない。最後に $A_{1j} \neq 0$ $(j \epsilon \{2, \cdots, n\})$ のときを考える。これを2つの場合に分ける。

i) $\nu_j = 0$ のとき

(76) 式および (83) 式より連立微分方程式

$$\dot{\varphi} = \varphi^2, \quad \dot{u}_1 = -\varphi u_1 \tag{84}$$

が得られる。これを解くと次の式が得られる。

$$\varphi = -\frac{1}{t+c_1}, \quad u_1 = c_2(t+c_1) \tag{85}$$

ただし c_1，c_2 は積分定数である。しかしこれらの操作量によって，区間 $t_a' \leqq t \leqq t_b'$ において恒等的に $\dot{g}_{1j}=0$，$\dot{C}_1=0$ を同時に満足させることはできないことが容易に分る。従って，このようなシンギュラは起らない。

ii)　$v_j \fallingdotseq 0$ のとき

やはり (76)，(83) 両式より得られる連立微分方程式を解くと，

$$\varphi=\frac{c_3\ v_j\ exp\ (v_j t)}{1-c_3\ exp\ (v_j t)},\quad n_1=c_4\{exp(-v_j t)-c_3\} \tag{86}$$

が得られる。ここに c_3，c_4 は積分定数である。しかし i) の場合と同様これらの操作量によって，区間 $t_a' \leqq t \leqq t_b'$ において恒等的に $\dot{g}_{1j}=0$，$\dot{C}_1=0$ を同時に満足させることはできないことが分る。従って，やはりこのようなシンギュラは生じない。

11. あとがき

完全混合流通反応系の最適化制御において，反応にあずかる物質の流入量のみを操作量とするときは，操作量の占める領域の境界上の値をとるべきことが分かった。この領域が多面体であれば，シンギュラな場合を除きオンオフ制御系を構成すべきである。このことは，反応速度式の形の如何を問わない。操作量の領域が $0 \leqq F_0 \leqq \hat{F}_0$，$0 \leqq u$ を同時に満足するものである場合について最適系の微分方程式を求め，単一反応槽による定容単一反応で槽内物質体積一定の場合の1次不可逆反応につき，この微分方程式を解いてそのトラジェクトリを表わす式を求め，切替の起らない条件を調べた。またこの1次不可逆反応に対するシンギュラ・コントロールについて述べた。

本研究は京都大学工学部数理工学科で行なったものである。御指導をいただいた椹木義一教授，布川昊先生に厚く御礼申し上げる。