

EQUATRAN-M で微分方程式を解く

佐渡友 秀夫・小口 梧郎

前回は、常微分方程式を代数方程式と連成した初期値問題をテーマに、代表的な方程式解法ソフトについて概観した。反応とか熱や物質の流れを伴う自然現象は微分方程式によりモデル化されるが、微分方程式の形、境界条件の与え方によっていくつかの型の問題に分類される。

今回は、方程式解法ソフトとして応用範囲の広い EQUATRAN-M を化学工業で現われる典型的な問題に適用した事例を紹介し、最後に装置の設計と運転方法検討の際に重要であるプロセス制御を組み込んだ動的シミュレーションへの応用について説明する。

層流境界層 (高階常微分方程式)

層流をなす流れの中に置かれた薄い平板に沿って境界層が形成されることはよく知られている (図 1)。境界層内の流れの状態は Navier-Stokes の式から導かれた次の Blasius の式で表現される¹⁾。いま、流れの速さ U_∞ [m]、動粘度 ν [m²/s] とすると境界層厚さ δ [m] は、

$$\delta = \sqrt{\nu x / U_\infty}$$

で与えられ、 η を y 方向の無次元座標 ($= y/\delta$) とすると無次元流れ関数 $f(\eta)$ は、

$$ff'' + 2f''' = 0 \quad (1)$$

で表わされる。境界条件は、

$$\eta = 0 \quad \text{で} \quad f = 0 \quad \text{かつ} \quad f' = 0 \quad (2)$$

$$\eta = \infty \quad \text{で} \quad f' = 1 \quad (3)$$

である。なお、流れ関数の定義から x, y 方向の速度成分 u, v [m/s] は、

$$u = U_\infty f' \quad (4)$$

$$v = (1/2) \sqrt{\nu U_\infty / x} (\eta f' - f) \quad (5)$$

として求められる。

境界層理論は化学工学の分野では、流れを扱う系での熱移動や物質移動などの解析面で主要な役割を演じている²⁾。

(1) 式は 3 階の常微分方程式であり、(2), (3) 式の条件下で解くことは 2 点境界値問題となる。ここでは高階常微分方程式の取り扱いを説明するために、(3) 式の条件の代わりに、

$$\eta = 0 \quad \text{で} \quad f'' = 0.33206 \quad (3')$$

が与えられているとして初期値問題の形で解いてみよう (2 点境界値問題としての計算法については次節で述べる)。

EQUATRAN-M の記法では微分を表わす (この場合 $d/d\eta$) のにアポストロフィ (') を用い、高階微分は ' を重ねて表記することは前回説明した。つまり、(1) から (5) 式までの表現をそのまま書けばよい。通常、高階常微分方程式の数値計算では 1 階ごとに変数置換をして連立 1 階型に変換する準備を必要とするが、ここではその必要がない。

本問を EQUATRAN-M で書いたソースリストが図 2 で、注釈文に式番号を付してあるので本文との対応は明らかであろう。13 行目は初期値の設定 (#), 18 行目の INTEGRAL 文は η を独立変数として 0.1 きざみで [0, 8] 間の積分を指示している ($\eta = 8$ は経験的に ∞ と同等と見なされる)。数値的な挙動が穏やかな問題なので、数値積分の手法は固定きざみの Runge-Kutta 法を使うことにする (手法としては Euler 法と可変きざみの Runge-Kutta 法も用意されているが、指定を省略すると固定きざみの R-K 法となる)。流体は水 ($\nu = 10^{-6}$) で $U_\infty = 1$ m/s のときの u, v を計算する。なお、平板の先端からの距離 x は INPUT 文により入力する。また、計算結果の表示とグラフ化のために TREND 文と OUTPUT 1 文が加えられている。

図 3 に f, f', f'' の積分経過と u, v の値を表の形で、図 4 には y 方向の無次元座標に対するそれらの分布をグラフとして示す (EQUATRAN-M のグラフ機能で描いたもの) が、計算結果は文献¹⁾ の値とよく一致している。さらに、別の x の値における v の様子を見るには入力値を対話的に変えてケーススタディすればよい。

図1 平板に沿った層流境界層

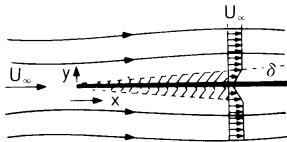


図3 計算結果 (トレンド出力)

/* 平板に沿った層流境界層

[入力データ]
x = 0.1 : 先端からの距離 [m]

eta	1:f	2:f'	3:f''	4:u	5:v
0	0	0	0.3320600	0	0
1.0000000	0.1655731	0.3297827	0.3230096	0.3297827	0.0002596381
2.0000000	0.6500295	0.6297705	0.2667532	0.6297705	0.0009637223
3.0000000	1.396819	0.8460502	0.1613607	0.8460502	0.001804604
4.0000000	2.305763	0.9555240	0.06423390	0.9555240	0.002397533
5.0000000	3.283296	0.9915473	0.01590668	0.9915473	0.002647524
6.0000000	4.279648	0.9989782	0.002402052	0.9989782	0.002710421
7.0000000	5.279272	0.9999269	0.0002201848	0.9999269	0.002719902
8.0000000	6.279252	1.000002	1.22443E-005	1.000002	0.002720762

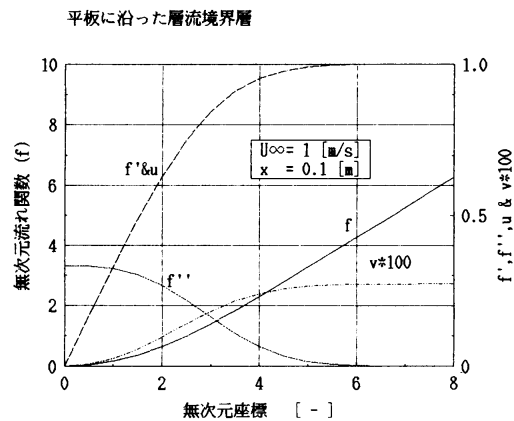
図2 平板に沿った層流境界層 (EQUATRAN-Mのソースリスト)

```

1: /* 平板に沿った層流境界層
2:   H.Schlichting "Boundary Layer Theory" */
3:
4: VAR f      "無次元流れ関数" ..
5:   ,eta     "無次元座標 [-]" ..
6:   ,Uinf=1  "U∞ [m/s]" ..
7:   ,nu=1E-6 "動粘度 [m2/s]" ..
8:   ,x      "先端からの距離 [m]"
9:
10: /* The Blasius equation (1) */
11:   f*f'' + 2*f''' = 0
12: /* Boundary conditions (2) */
13:   f # 0 ; f' # 0 ; f'' # 0.33206
14: /* Velocity (4) & (5) */
15:   u = Uinf*f'
16:   v = SQRT(nu*Uinf/x)/2*(eta*f'-f)
17:   v100 = v*100
18: INTEGRAL eta [0,8] STEP 0.1
19:
20: INPUT x
21: TREND f,f',f'',u,v STEP 1.0
22: OUTPUT1 eta,f,f',f'',x,u,v100 STEP 0.5

```

図4 計算結果のグラフ表示



逆混合を伴う管型反応器 (2点境界値問題)

触媒粒子を充填した長さ L, 管径 D の管型反応器 (図5) に原料 A を供給し (濃度 C_f , 流速 u), $A + A \rightarrow B$ の反応を行わせて製品 B を得る。A の濃度を C_A とすると反応速度は次式で与えられる (k は反応速度定数)。

$$dC_A/dt = -kC_A^2$$

なお, 反応熱は無視できるものとする。

充填物の存在のため流れと逆方向に混合を生じ, この逆

混合 (拡散ともいう) を考慮した管型反応器のモデルは次の無次元化した式で表される³⁾。

$$\frac{1}{Pe} \frac{d^2C}{dx^2} - \frac{dC}{dx} - RC^2 = 0 \quad (6)$$

ここで, Pe はペクレ数 ($= Lu/D$, D は拡散係数), R は無次元反応速度 ($= kLC_f/u$), C は無次元濃度 ($= C_A/C_f$), x は無次元長さ ($= \ell/L$) である。境界条件は,

$$x = 0 \quad \text{で} \quad C - \frac{1}{Pe} \frac{dC}{dx} = 1 \quad (7)$$

図5 逆混合を伴う管型反応器

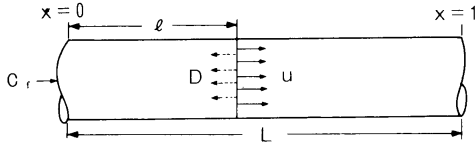


図6 逆混合を伴う管型反応器の解析 (EQUATRAN-M ソースリスト)

```

1: /* 逆混合を伴う管型反応器の解析 (1) */
2:
3: VAR x "無次元長さ (=l/L) " ..
4: ,C "無次元濃度 (=CA/Cf) " ..
5: ,C0 "初期値 (仮定) " ..
6: ,R "無次元反応速度 (k*L*Cf/u) " ..
7: ,Pe "Peclet数 (=L*u/D) " ..
8:
9: /* 主方程式 式(6), (7) & (8) */
10: (1/Pe)*C'' - C' - R*C^2 = 0
11: C # C0 ; C' # Pe*(C0-1)
12: /* 随伴方程式 式(10) & (11) */
13: z'' - Pe*(z' + 2*R*C*z) = 0
14: z # 1 ; z' # Pe
15: INTEGRAL x [0,1] STEP 0.1
16: /* Newton-Raphson法による修正 */
17: F = C' ; dF = z' /* 式(9) */
18: C0new = C0 - F/dF /* 式(12) */
19:
20: INPUT Pe,R,C0
21: TREND C,C',z,z' STEP 0.1
22: OUTPUT F,C0new
    
```

図7 計算結果 (第1回 iteration)

/* 逆混合を伴う管型反応器の解析 (1) */

[入力データ]				
Pe	= 2	: Peclet数 (=L*u/D)		
R	= 2	: 無次元反応速度 (k*L*Cf/u)		
C0	= 0.7	: 初期値 (仮定)		

x	1:C	2:C'	3:z	4:z'

0	0.7000000	-0.6000000	1.0000000	2.000000
0.1000000	0.6435076	-0.5326776	1.252639	3.104129
0.2000000	0.5929442	-0.4810497	1.632802	4.570131
0.3000000	0.5468330	-0.4434340	2.183041	6.530778
0.4000000	0.5038169	-0.4191025	2.960955	9.155603
0.5000000	0.4625676	-0.4081887	4.043287	12.65942
0.6000000	0.4217021	-0.4116595	5.530860	17.31002
0.7000000	0.3796985	-0.4313300	7.554126	23.43251
0.8000000	0.3348093	-0.4698958	10.27880	31.40517
0.9000000	0.2849731	-0.5309444	13.91031	41.63804
1.0000000	0.2277271	-0.6188883	18.69462	54.51890
[計算結果]				
F	= -0.6188883			
C0new	= 0.7113518			

$$x = 1 \text{ で } \frac{dC}{dx} = 0 \quad (8)$$

$$F = C' \quad \text{at } x = 1 \quad (9)$$

である。反応熱が大きい場合には熱移動に関する微分方程式と連立させるが、ここでは反応熱が小さいので流れ方向に温度一定として熱移動式を省略する。

2点境界値問題は数値解析の中でも最も難しいものの一つで多くの解法が提案されているが、本問のように非線形の場合には shooting method が基本となる。これは、初期値問題としては不足する分の条件を仮定し、積分の終端での結果を見て仮定値を繰り返し修正する方法である。仮定値の修正法にもいろいろあり、たとえば本誌8月号⁴⁾で説明した Regula falsi 法も有力であるが、ここではより収束の速い Newton-Raphson 法を用いよう⁵⁾。

x = 0 での C の値 (C(0):以下 C0 と書く) を仮定すれば (7) 式から C'(0) が算出され数値積分を進めることができる。x = 1 で条件(8)式を満足させるように、

を評価関数に選び、F = 0 になるよう C0 を修正する。新しい C0 の値を計算するとき F' (= dF/dC0) の値を必要とするが、そのために z = ∂C/∂C0 という補助関数を導入する。z'' = ∂C''/∂C0 であることから次の随伴方程式を (6) 式と連立して解く。

$$z'' - Pe(z' + 2RCz) = 0 \quad (10)$$

$$x = 0 \text{ で } z = 1 \text{ かつ } z' = Pe \quad (11)$$

その結果、F' = z' (at x = 1) として得られるので、新しい C0 の仮定値は、

$$\text{新 } C0 = C0 - F/F' \quad (12)$$

として求められる。

さて、本問題を EQUATRAN-M で書き下したのが図6

で、(6)～(12)式に対応して記述されているので特に解説を要さないであろう。Pe = 2, R = 2 とし、C0 の仮定値を 0.7 として計算した結果を図 7 に示す。F の値はまだ 0 と見なせないので C0new の値を次の C0 の仮定値としてケーススタディを行うが、きざみの指定が適切でないと計算が不安定になるので積分結果の健全性を確認しながら進めることが大切である。ケーススタディはコマンド一つで実行でき、本例については 3～4 回で収束する。

ところで、この問題では Pe の値の大小によって数値計算の収束性が大きく影響される。たとえば、Pe = 10 とすると C0 のわずかな変動で F の値は大幅に変わり、十分な計算桁数がないと F = 0 に収束させるのが困難となる。この現象を物理的に解釈すると、Pe が大ということは拡散係数 D が相対的に小であることを意味し、拡散項((6)式の第 1 項)は移流項(第 2 項)に比べて寄与が小さいということである。つまり、数学モデルとしては第 1 項を省略した形(1 階常微分方程式)で十分であり、したがって境界条件は 1 つでよい。にもかかわらず 2 つも与えられた境界条件を満足しようとするので数値的に特異な挙動を示すわけである。

このような場合の数値計算上の対応策として、x = 1 から 0 への逆向き積分(backward integration)が有効である⁶⁾。初期条件は x = 1 における C の値 C1 を仮定して、

$$x = 1 \text{ で } C = C1 \text{ かつ } C' = 0 \quad (13)$$

とし、(9)式の代わりに(7)式に対応した

$$F = C'/Pe - C \quad (14)$$

を用いる。今度は $z = \partial C / \partial C1$ とするが、随伴方程式は全く同じになり、これに関する初期条件は、

$$x = 1 \text{ で } z = 1 \text{ かつ } z' = 1 \quad (15)$$

となる。その結果、F' は次式で求められる。

$$F' = z'/Pe - z \quad \text{at } x = 0 \quad (16)$$

図 6 のリストを一部改訂して逆向き積分による解法を記述したのが図 8 である。15 行目の INTEGRAL 文で x の積

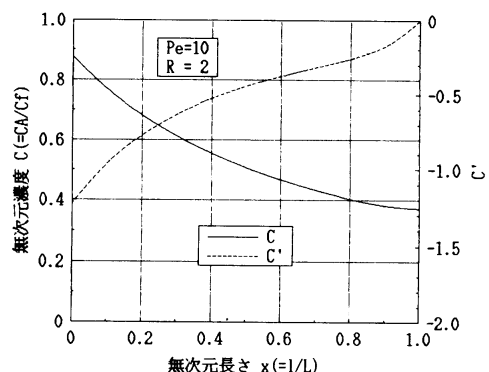
図 8 管型反応器の解析 (逆向き積分)

```

1:  /* 逆混合を伴う管型反応器の解析 (2) */
2:
3:  VAR x    "無次元長さ (=1/L)"      " ..
4:      ,C   "無次元濃度 (=CA/Cf)"    " ..
5:      ,C1  "初期値 (仮定)"          " ..
6:      ,R   "無次元反応速度 (k*L*Cf/u)" " ..
7:      ,Pe  "Peclet数 (=L*u/D)"      " ..
8:
9:  /* 主方程式 式 (6) & (13) */
10: (1/Pe)*C'' - C' - R*C^2 = 0
11: C # C1 ; C' # 0
12: /* 随伴方程式 式 (10) & (15) */
13: z'' - Pe*(z' + 2*R*C*z) = 0
14: z # 1 ; z' # 0
15: INTEGRAL x [1,0] STEP 0.1
16: /* Newton-Raphson法による修正 */
17: F = C'/Pe - C + 1 /* 式 (14) */
18: dF = z'/Pe - z /* 式 (16) */
19: C1new = C1 - F/dF /* 式 (12) */
20:
21: INPUT Pe,R,C1
22: TREND C,C',z,z' STEP 0.1
23: OUTPUT F,C1new
24: OUTPUT1 x,C,C',Pe,R STEP 0.1

```

図 9 計算結果のグラフ表示
逆混合を伴う管型反応器の解析 (2)



分範囲が [1, 0] となっていることに注目願いたい。この収束性は安定しており、Pe = 10, R = 2 のときの計算結果をグラフ化して図 9 に示すが、C の分布曲線から妥当な結果であると判断される。

なお、前節の境界層問題を 2 点境界値問題として扱くと

きにも、同様に Newton-Raphson 法の考え方が適用できる^(注)。

非定常一次元伝熱 (偏微分方程式)

$T_0 = 30^\circ\text{C}$ の一定温度にある厚さ $L = 0.3\text{ m}$ の十分な断熱煉瓦の壁を考える。いま、一方の面を突然 $T_1 = 500^\circ\text{C}$ にさらし他方を T_0 のままに保つとき、煉瓦壁内部の温度変化を求めよ。ただし、煉瓦の物性は熱伝導度 $k = 0.9\text{ kcal/m}\cdot\text{hr}\cdot^\circ\text{C}$ 、密度 $\rho = 480\text{ kg/m}^3$ 、比熱 $C_v = 0.23\text{ kcal/kg}\cdot^\circ\text{C}$ とする⁷⁾。

これは代表的な非定常一次元伝熱の問題であり、時間を t [hr]、低温面から測った距離を ℓ [m]、内部温度を T [$^\circ\text{C}$] とすると基礎式は次の放物型偏微分方程式で与えられる。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (17)$$

ここで、 $x = \ell/L$ ($0 \leq x \leq 1$)、 $\alpha = k/(\rho C_v L^2)$ 。題意から初期条件と境界条件は、

$$t = 0 \text{ のとき } T = T_0 \quad (18)$$

$$t = t \text{ のとき } \begin{cases} x = 0 \text{ で } T = T_0 \\ x = 1 \text{ で } T = T_1 \end{cases} \quad (19)$$

さて、(18)、(19)式の条件下で(17)式を解くために、最もポピュラーな偏微分方程式の数値解法である差分法を用いる。そのために t 方向には適当な時間間隔 Δt 、 x 方向は L を N 等分した Δx のきざみで差分化する (図 10)。すなわち、

注) (3)式の代わりに $\eta = 0$ における f'' の値 (f_2 と書く) を仮定して初期値問題に置き替える。随伴方程式とその初期条件は、

$$\begin{aligned} f''z + fz'' + 2z''' &= 0 \\ \eta = 0 \text{ で } z = 0, z' = 0, z'' &= 1 \end{aligned}$$

反復修正スキームは次の通り。

$$\begin{aligned} F &= f' - 1 \quad \text{at } \eta = \infty \\ F' &= z' \quad \text{at } \eta = \infty \\ \text{新 } f_2 &= f_2 - F/F' \end{aligned}$$

$$t = i \Delta t \quad (i = 0, 1, \dots)$$

$$t = j \Delta x \quad (j = 0, 1, \dots, N)$$

(17)式を差分近似するに当たり、計算の安定性を考慮して Crank-Nicolson 法を採用すると、

$$\begin{aligned} \frac{T_{i+1,j} - T_{i,j}}{\Delta t} &= \frac{\alpha}{2 \Delta x^2} (T_{i,j+1} - 2 T_{i,j} + T_{i,j-1} \\ &+ T_{i+1,j+1} - 2 T_{i+1,j} + T_{i+1,j-1}) \quad (20) \\ (i = 0, 1, \dots; j = 1, 2, \dots, N-1) \end{aligned}$$

と書ける。また、(18)、(19)式は、

$$T_{0,j} = T_0 \quad (j = 1, \dots, N-1) \quad (21)$$

$$T_{i,0} = T_0, T_{i,N} = T_1 \quad (i = 0, 1, \dots) \quad (22)$$

つまり、時間 t が 1 ステップ進んだときの各位置での温度 $T_{i+1,j}$ ($j = 1, \dots, N-1$) は、初期状態から始めてつぎつぎに連立一次方程式を解いて得られる。

さて、図 11 にソースリストを示すが、格子点での温度 T は 2 次元配列として 4 行目で宣言されている。EQUATRAN-M では配列変数に 0 という添字が許されないので i や j の下限を 1 にずらしてある。13~17 行目の MACRO CRANK で (20) 式が定義されており ($\beta = \alpha \Delta t / (2 \Delta x^2)$) として簡略化)、格子点に対応してこの式が CALL される。MACRO NICOLS は t 方向の 1 ステップ分をまとめて表現している。したがって、25 行目の CALL で第 1 ステップの方程式がすべて記述されることになる。(なお、図 11 の 13~29 行は EQUATRAN-M のパラメータと配列記法で図 12 のように簡潔に書くことができる。)

計算結果を図 13 に示すが、壁断面での温度分布を時間ステップ $i = 1, 2, 3, 4, 6$ に対してプロットしてある (図 11 の OUTPUT 1 文で $T(1), T(2), \dots$ とあるのはそのための準備である)。伝熱により温度が上昇していく様子が一目でわかる。

[別法]

(17)式を x 方向のみ差分近似 (量子化) し、 t に関する常微分方程式として解く方法もある。すなわち、

図10 差分格子

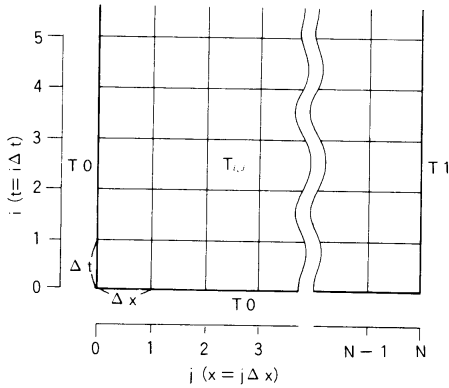


図12 コンパクトな記述

```

12: LOCAL M1=1:M-1, M2=2:M, ...
13:     N1=1:N-2, N2=2:N-1, N3=3:N
14:     T(M2,N2)-T(M1,N2) = beta *
15:     ( T(M1,N3)-2*T(M1,N2)+T(M1,N1) )
16:     + T(M2,N3)-2*T(M2,N2)+T(M2,N1) )
    
```

図13 非定常一次元伝熱問題の計算結果

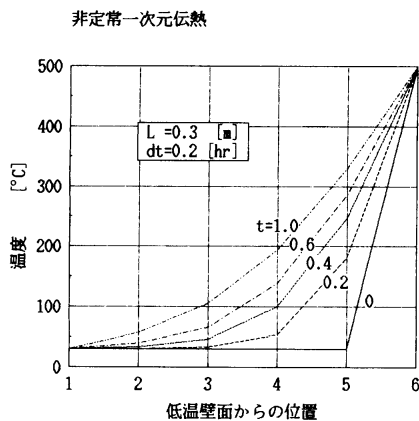


図11 非定常一次元伝熱問題 (差分法)

```

1: /* 非定常一次元伝熱 */
2:
3: LOCAL M=6, N=6
4: GLOBAL VAR T(M,N) "温度 [°C]" ..
5:     ,beta "係数 β" ..
6: VAR dt = 0.2 "時間間隔 [hr]" ..
7:     ,dx = 1/(N-1) "きざみ [-]" ..
8:     ,L = 0.30 "壁厚 [m]" ..
9:     ,k = 0.9 " [kcal/m·hr·°C]" ..
10:    ,ro = 480 " [kg/m3]" ..
11:    ,Cv = 0.23 " [kcal/kg·°C]" ..
12:
13: MACRO CRANK
14:     (T(i+1,j)-T(i,j)) = beta *
15:     ( T(i,j+1) -2*T(i,j) +T(i,j-1) )
16:     + T(i+1,j+1)-2*T(i+1,j)+T(i+1,j-1) )
17: END CRANK
18: MACRO NICOLS
19:     CALL CRANK (i=I,j=2)
20:     CALL CRANK (i=I,j=3)
21:     CALL CRANK (i=I,j=4)
22:     CALL CRANK (i=I,j=5)
23: END NICOLS
24:
25:     CALL NICOLS (I=1)
26:     CALL NICOLS (I=2)
27:     CALL NICOLS (I=3)
28:     CALL NICOLS (I=4)
29:     CALL NICOLS (I=5)
30:
31: /* 初期条件 */
32:     T(1,2:N-1)=T0 ; T0=30 /* [°C] */
33: /* 境界条件 */
34:     T(,1)=T0 ; T(,N)=T1 ; T1=500 /* [°C] */
35:
36:     alpha = k/(ro*Cv*L^2)
37:     beta = alpha*dt/(2*dx^2)
38:
39: OUTPUT dt,dx,T
40: OUTPUT1 L,dt,T(1),T(2),T(3),T(4),T(5),T(6)
    
```

$$\frac{dT}{dt} = \alpha \frac{T_{j+1} - 2T_j + T_{j-1}}{\Delta x^2} \quad (j = 1, \dots, N-1) \quad (23)$$

$$T_0 = T_0, \quad T_N = T_1 \quad (24)$$

を初期条件

$$T_j = T_0 \quad (j = 1, \dots, N-1) \quad (25)$$

の下で解く。そのリストを図14に示すが、計算結果はxの

各点での時間変化として得られる(図15)。このグラフはスプライン曲線を使って滑らかに表示してある。

バッチ反応器のシミュレーション

前回、方程式解法ソフトによるダイナミックシミュレーションの例として、連続重合反応器を扱ったが、今回は同じ槽形反応器でも運転方法の全く異なるバッチ(回分)反応器を取り上げてみよう。連続反応器では、原料の供給と製

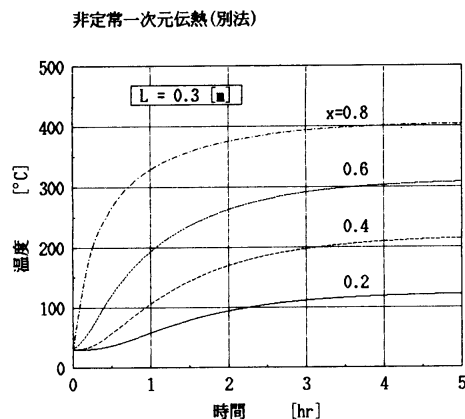
図 14 非定常一次元伝熱問題の別法

```

1: /* 非定常一次元伝熱(別法) */
2:
3: LOCAL N=6
4: VAR T(N)      "温度      [°C]" ..
5:   ,t          "時間      [hr]" ..
6:   ,dt= 0.1    "時間間隔 [hr]" ..
7:   ,dx=1/(N-1) "きざみ    [-]" ..
8:   ,L = 0.30   "壁厚      [m]" ..
9:   ,k = 0.9    "[kcal/m·hr·°C]" ..
10:  ,ro= 480    "[kg/m3]" ..
11:  ,Cv= 0.23   "[kcal/kg·°C]" ..
12:
13:  T'(2:N-1)=beta*(T(3:N)-2*T(2:N-1)+T(1:N-2))
14:  INTEGRAL t [0,5] STEP dt
15:
16: /* 初期条件 */
17:  T(2:N-1)#T0      ; T0=30 /*[°C]*/
18: /* 境界条件 */
19:  T(1)=T0 ; T(N)=T1 ; T1=500 /*[°C]*/
20:
21:  alpha = k/(ro*Cv*L^2)
22:  beta = alpha/dx^2
23:
24: TREND  T STEP 0.5
25: OUTPUT L,t,T(2),T(3),T(4),T(5) STEP 0.2

```

図 15 非定常一次元問題の別法による解
(スプライン関数により平滑化)



品の抜き出しが連続的に行われており、通常の運転状態ではほぼ系が定常に保たれるのに対し、バッチ反応器では、原料の装入、昇温、反応、冷却、製品の抜き出しといった操作が一つの時間的なシーケンスとして繰り返される。したがって、系は常に非定常な状態にあり、望ましい運転条件を維持するためにはプロセス制御がより重要となる。さらに、このようなシーケンスを実現するためには、反応槽の温度や時間の経過などをトリガーとして、いろいろな運転条件の変更(これをオペレーションと呼ぶことにする)が必要となる。オペレーションを伴うシミュレーションでは、運転条件がプロセスの状態量だけでなく、過去のオペレーションの履歴にも左右されるため、一般の方程式ではモデル化することが難しい。EQUATRAN-Mでオペレーションを含むプロセス制御をどのように扱うかがこの節の主題である。

図 16 にバッチ反応器の構成を示す。反応は溶媒中において、原料の A と B とから次式によって製品 C を製造する仮想的なものである。



反応槽にはあらかじめ A と溶媒とが装入されており、B

は反応槽を昇温後、ほぼ当量(すなわち A の 3 倍)を一定の時間的なパターンに従って供給する。反応は B の供給とともに進行するが、B の供給終了後も一定時間保温運転を行うことによって完了させる。製品の取り出しはその後反応槽を一定の温度まで冷却した後行われる。表 1 および図 17 にこのシーケンスの詳細を進行条件とともに示してある。

(26) 式の反応速度 r [kgmol/m³h] は次式で与えられる。

$$r = k \cdot C_A \cdot C_B^3 \quad (27)$$

$$k = 2.43 \times 10^{15} \exp\left(-\frac{20000}{1.986} \frac{1}{t_r + 273}\right) \quad (28)$$

ここに C_A 、 C_B はそれぞれ原料 A および B の濃度 [kgmol/m³] であり、 t_r は反応槽の温度 [°C] である。B の供給量を F_B [kgmol/h] とすると、反応槽の物質収支から次の式が得られる。

$$\frac{dC_A}{dt} = -r \quad (29)$$

$$\frac{dC_B}{dt} = -3r + F_B/V \quad (30)$$

$$\frac{dC_C}{dt} = r \quad (31)$$

図 16 バッチ反応器

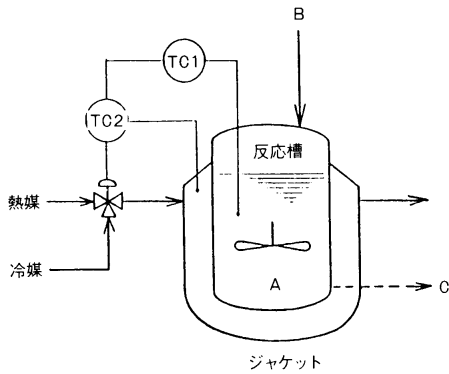
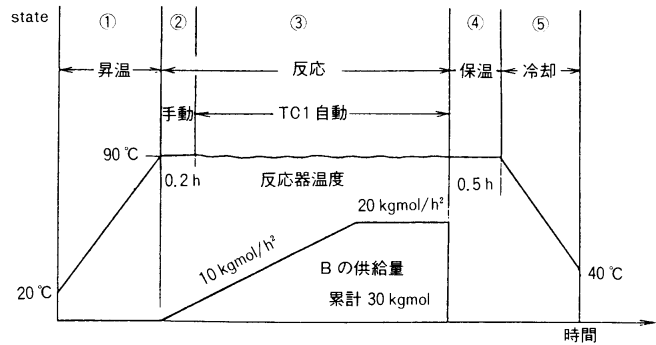


図 17 運転シーケンス



Vは反応槽の容積 [m³], C_cは製品Cの濃度 [kgmol/h] である。

つぎに、ジャケットの温度を t_j [°C],ジャケットによる加熱量を Q_j [kcal/h] (冷却の場合は負とする) とすれば、反応槽の熱収支と伝熱の条件から、

$$c_s \frac{dt_R}{dt} = q_R \cdot r + Q_j / V \quad (32)$$

$$Q_j = U_j \cdot A_j (t_j - t_R) \quad (33)$$

が得られる。c_sは反応液の比熱 [kcal/m³°C], q_Rは反応

表 1 運転シーケンス

番号 (state)	状態	内容	次の状態への移行条件 (条件名)
—	初期状態	原料 A (初期濃度 1 kgmol/m ³) が装入されており反応槽, ジャケットとも 20°C になっている。	—
1	昇温	熱媒 (120°C) を用いて反応槽を昇温する。	反応槽温度 (t _R) が 90°C 以上 (start)
2	反応 (手動温度制御)	TC1 は手動で出力を 88°C に設定。原料 B を図 17 に示すパターンで供給する。	0.2 h 経過 (go_auto)
3	反応 (自動温度制御)	TC1 を自動的に切り換える。反応槽の設定温度は 90°C。原料 B の供給は継続する。	原料 B の累積供給量が 30 kgmol を超えた。 (feed_end)
4	保温	原料, 冷媒の供給を停止した状態で保持し, 反応を完了させる。	0.5 h 経過 (go_cool)
5	冷却	冷媒 (20°C) によって反応槽を冷却する。	反応槽温度が 40°C 以下 (allover)

表2 計算条件

反応槽容積 (V)	10 m ³
反応熱 (q _R)	12000 kcal/kgmol
反応液の比熱 (c _s)	400 kcal/m ³ °C
ジャケット伝熱面積 (A _j)	20 m ²
総括伝熱係数 (U _j)	500 kcal/m ² h°C
TC1のゲイン	- 2 °C/°C
TC1の積分時間	0.3 h
TC1の微分時間	0.1 h

図18 バッチ反応器のシミュレーション (EQUATRAN-Mのソースリスト)

```

1: /* バッチ反応器のシミュレーション */
2:
3: VAR tR=20      "反応槽温度 [C]" ..
4:   ,V=10        "反応槽の容積 [m3]" ..
5:   ,cs=400      "反応液の比熱 [kcal/m3/C]" ..
6:   ,CA#1        "Aの濃度 [kgmol/m3]" ..
7:   ,CB#0        "Bの濃度 [kgmol/m3]" ..
8:   ,CC#0        "Cの濃度 [kgmol/m3]" ..
9:   ,FB          "Bの供給量 [kgmol/h]" ..
10:  ,sFB         "Bの累積供給量 [kgmol]" ..
11:  ,qR=12000    "反応熱 [kcal/kgmol]" ..
12:  ,r           "反応速度 [kgmol/m3/h]" ..
13:  ,Aj=20      "伝熱面積 [m2]" ..
14:  ,Uj=500     "伝熱係数 [kcal/m2/h/C]" ..
15:  ,Qj         "加熱冷却量 [kcal/h]" ..
16:  ,tj#20      "ジャケット温度 [C]" ..
17:  ,tjs        "ジャケット温度設定 [C]" ..
18:  ,th=120     "熱媒温度 [C]" ..
19:  ,tc=20      "冷媒温度 [C]" ..
20:  ,t          "時間 [h]" ..
21:  ,state      "状態番号" ..
22:
23: MACRO PIDman /* PIDコントローラ (手動操作付) */
24:   e = Y-(SET)
25:   U1 = e
26:   = 0 WHEN MAN
27:   U1 = U0+TI/(KP)
28:   U2 = KP*(e+U1/TI+TD*DERIV(e,0))
29:   U = U2
30:   = U0 WHEN MAN
31: END PIDman
32:
33: /* 物質収支 */
34: CA' = -r
35: CB' = -3*r + FB/V
36: CC' = r
37: r = k*CA*CB^3
38: k = 2.43e15 * EXP(-20000/1.986/(tR+273))
39: /* 熱収支 */
40: cs*tR' = qR*r + Qj/V
41: Qj = Uj*Aj*(tj-tR)
42: /* Bのフィード量制御 */
43: FB = min(time1*10, 20) * (state<=3)
44: time1' = (state>=2); time1 # 0
45: feed_end = sFB>=30 & state==3
46: sFB' = FB; sFB # 0
47: /* 温度制御 */
48: 0.1*tj' + tj = tjs /* TC2の一次おくれ */
49: tjs = tw /* 制御 */
50: = th WHEN state=1 /* 昇温 */
51: = tR WHEN state=4 /* 保温 */
52: = tc WHEN state=5 /* 冷却 */
53: TC1: CALL PIDman(Y=tR, SET=90, U=tw, U0=88,
54:   , KP=-2, TI=0.3, TD=0.1)
55: TC1.MAN = (state!=3)
56: start = tR>90 & state==1
57: go_auto = time1>0.2 & state==2
58: go_cool = time2>0.5 & state==4
59: time2' = (state>=4); time2 # 0
60: allover = state==5 & tR<=40
61: INPUT state
62: INTEGRAL t[0.10] STEP 0.02 ..
63: BREAK( start,go_auto,feed_end,go_cool,allover )
64:
65: TREND tR,tj,CA,CB,CC STEP 0.1
66: OUTPUT1 t,tR,tj,CA,CB,CC STEP 0.02

```

熱 [kcal/kgmol], U_j, A_j はそれぞれジャケットの総括伝熱係数 [kcal/m²h°C] と伝熱面積 [m²] を表わす。

反応槽の温度制御は 2 つの制御器, TC1 (PID コントローラ) と TC2 (PI コントローラ) とのカスケード制御によって行われる。ただし, TC2 によるジャケット温度の制御系は一次おくれ (時定数 0.1h) で近似できるものとする。すなわち, TC1 の出力であるジャケット温度の設定値 t_{js} [°C] とジャケット温度 t_j [°C] との間には次の関係が成り立つ。

$$0.1 \frac{dt_j}{dt} + t_j = t_{js} \quad (34)$$

以上の式を用いて昇温の開始から冷却の終了時点までのシミュレーションを行ってみよう。その他の計算条件は表 2 にまとめておいた。

EQUATRAN-M によるソーステキストの一例を図 18 に示す。

23 ~ 31 行目で定義されているマクロ PIDman は PID コントローラのための式をまとめたものである。マクロ中の Y が制御変数, SET がその設定値, U が操作変数を表わしている。このマクロにはコントローラの手動操作時に操作量として出力される手動入力 U0 が用意されており, 変数 MAN の値を 1 または 0 に設定することによって手動または自動の切り替えが可能になっている。なお 28 行目の DERIV は変数の微分値を与える関数である。

33 ~ 41 行目の物質収支, 熱収支の式は, 式(27)~(33)そのままなので説明の必要はないであろう。43 行目以下は原料 B の供給パターンと温度制御系に関する式で, これらは運転シーケンスの進行状態によって影響されるのでやや複雑である。以下にこれらの取り扱いについて説明する。

まず, シーケンスの進行状態を表わす変数 state が導入されている。これは表 1 の最左欄に与えられた状態の番号に対応しており, この state を用いることによりシーケンスの進行に依存する関係式をスマートに表わすことができる。たとえば, 原料 B の供給量 F_B は, state が 2 で起動するタイマー (44 行目の time1 で定義されている) を用いて 43 行目の方程式で表現でき, またコントローラ TC1 の自動/手動の切り替えは 55 行目で, TC2 の制御モードの切り替え

図 19 バッチ反応器のシミュレーション
(入力データ)

```

1: /* バッチ反応器のシミュレーション */
2: state=1
3: >CONT
4: state=2
5: >CONT
6: state=3
7: >CONT
8: state=4
9: >CONT
10: state=5
    
```

図 21 計算結果 (グラフ出力)

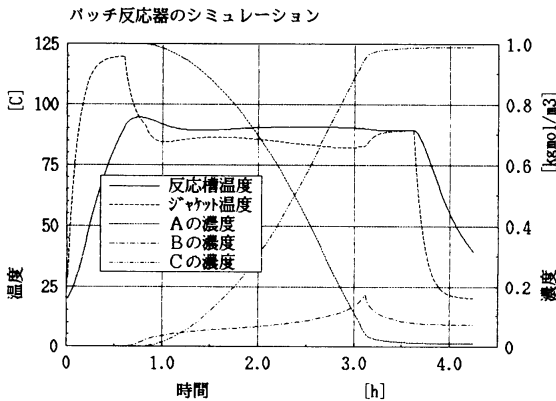


図 20 計算結果 (トレンド出力) の一部

```

/* バッチ反応器のシミュレーション */
[ 入力データ ]
state = 1 : 状態番号
-----
t      1:tR      2:tj      3:CA      4:CB      5:CC
-----
0      20.00000   20.00000   1.0000000  0         0
0.1000000  28.42274   83.21148   1.0000000  0         0
0.2000000  43.64056   106.4660   1.0000000  0         0
0.3000000  58.67744   115.0211   1.0000000  0         0
0.4000000  71.55986   118.1683   1.0000000  0         0
0.5000000  82.02397   119.3262   1.0000000  0         0
0.6000000  90.33194   119.7521   1.0000000  0         0
t = 0.6      で start により中断しました

[ 入力データ ]
state = 2 : 状態番号
-----
0.7000000  94.16541   99.68113   0.9999948  0.004984380  5.20681E-006
0.8000000  94.41809   92.29732   0.9994097  0.01822916   0.0005902792
t = 0.82      で go_auto により中断しました

[ 入力データ ]
state = 3 : 状態番号
-----
0.9000000  93.29595   85.92066   0.9948986   0.02969590   0.005101365
1.0000000  91.68236   84.35944   0.9853915   0.03617452   0.01460849
1.1000000  90.42418   84.53008   0.9720357   0.04110697   0.02796434
1.2000000  89.63328   85.08357   0.9550892   0.04526749   0.04491084
1.3000000  89.23718   85.63223   0.9345956   0.04878683   0.06540439
1.4000000  89.12940   86.05040   0.9105986   0.05179580   0.08940140
1.5000000  89.21055   86.29947   0.8831474   0.05444228   0.1168526
1.6000000  89.39955   86.37844   0.8522899   0.05686959   0.1477101
1.7000000  89.63559   86.30513   0.8180683   0.05920483   0.1819317
1.8000000  89.87657   86.10619   0.7805186   0.06155571   0.2194814
1.9000000  90.09616   85.81082   0.7396709   0.06401284   0.2603291
    
```

は 49 ~ 52 行目の条件付の式によって、いずれも state を使って表わすことができる^(注)。

ところで state 自身はどのような式で表現すればよいであろうか。これは履歴に依存する変数であるため一般の方程式で表現することは困難である。

EQUATRAN-M には変数間に一定の関係が成り立ったことを条件に、積分を一旦中断して、入力変数 (INPUT 文

(注) これらの式には論理演算がしばしば用いられているが、EQUATRAN-M では論理演算の結果は、真が 1、偽が 0 となる。リスト中に表われる == および != はそれぞれ比較演算子としての符号および不等号であり、& は論理積を表わす。

で指定した変数) の値を読み直す機能が用意されており、これを利用することができる。62 行目の INTEGRAL 文の中の BREAK (……) の項で指定されている変数 (start, go_auto, feed_end, go_cool, allover) が中断の条件を与える変数で、これらのいずれかの値が真 (正) になったときに中断が起こる。たとえば、start は state が 1 の状態で昇温が完了 ($t_R > 90$) したときに真となる変数であり (56 行目)、この中断のときに state を読み直して state = 2 とすることができる。start 以外の変数についても同様で、表 1 にその成立条件が与えられている。これらの式の中でも論理演算が効果的に使われているのが理解できよう (リストの 45, 57, 58, 60 行目)。

積分の中断時に読み直すデータは対話形式あるいはデータテキストによって一括して与えることが可能で、図 19 はデータテキストの場合である。このリスト中の > CONT はデータ入力後積分計算を継続することの指示である。図 20 に計算結果(トレンド出力)の一部を、図 21 にグラフ作成例を示した。

このように、方程式解法ソフト EQUATRAN-M では代数方程式であっても微分方程式であっても取り扱いは自在である。記述が簡潔でしかもモデルの変更に容易に対処できるので、いままでは微分方程式を解くことにちゅうちょしていた人でも気軽に解を得ることができる。さらに、分布や時間変化を調べるときには、結果のグラフ表示ができ、しかも簡単にデザインを修正できるグラフ機能は大変便利

で、工学的な判断を助ける意味からもまた報告書の説得性を高める面からも、不可欠と言ってよいだろう。

(さだとも ひでお・おぐち ごろう 三井東圧化学株)

〈参考文献〉

- 1) H. Schlichting; "Boundary layer theory", McGraw Hill, 1960, p. 116
- 2) 城塚 正 他; 境界層方程式の数値解法, 化学工学, 第 33 巻, (1969) p. 224
- 3) 化学工学協会編; 化学工学便覧(改訂四版), 1978, p. 1499
- 4) 小口 梧郎, 佐渡友秀夫; 化学工業における数値計算-1, information vol. 5 No. 8 (1986) p. 54
- 5) M. Kubicek, V. Hlaváček; Solution of nonlinear boundary value problem-I, Chem. Eng. Sci., vol. 25 (1970) p. 1833
- 6) R. C. Aiken, L. Lapidus; Problem approximation for stiff ordinary differential equations, AIChE J, vol. 21 (1975) p. 1227
- 7) H. S. Mickley, T.K. Sherwood, C.E. Reed(平田光穂監訳); "化学技術者のための応用数学" 丸善, 1968, p. 351