

氏 名	吉 田 総 夫 よし だ ぶさ お
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	論 工 博 第 615 号
学位授与の日付	昭 和 48 年 7 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	化学反応装置の最適設計操作に関する研究

論文調査委員 (主 査)
 教授 高松武一郎 教授 井伊谷鋼一 教授 永田進治

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、化学反応装置の最適設計・操作に関する一連の問題を系統的に取り扱い、反応系、反応装置の特性と最適操作条件や最適設計条件の特性との相関を明らかにするとともに、簡便な手段で最適値を得るための各種の図解法を提示し、実用的な最適化計算法について考察したものであり5章よりなっている。

第1章では、従来の研究を詳細に分析し、量的側面からと質的側面からまとめ、反応装置の最適化研究での評価と展望を試みている。さらに本論文の目的と概要を示している。

第2章では、一般的な単純可逆発熱反応についてアレニウス型の反応速度定数を用いて最適温度操作の特性と、これにおよぼすパラメータ偏差の影響について考察している。通常の頻度因子ならびに活性化エネルギーの関数である新しいパラメータ、および新しく定義された濃度変数Xを用いることによって、最適温度操作曲線と平衡曲線とを、温度T対X座標上で直角双曲線として一般的に表現している。さらに偏差の最適管長への影響を2つの見地から考察し、正逆一次反応の場合について計算結果を図示している。最後に、反応速度定数の温度依存性がアレニウス型でない場合の最適温度操作の特徴を明らかにしている。

第3章では、目的生成物の最終転化率が与えられている場合に、管型反応装置に対しては、最短の滞留時間で反応が完結するような最適温度操作を、槽数の与えられた槽列反応装置に対しては、全滞留時間を最小にするような最適温度と滞留時間分布とを、並発反応について求め、並発反応の最適条件の特性を考察している。

最適化の数学的手法としてはポントリャーギンの最大値原理ならびに離散型最大値原理を用いている。

管型反応装置では、1:1 次並発反応の場合にのみ解析解が求まり、一般的な $m:n$ 次反応の最適温度分布を求めるには2点境界値問題を解かなければならないことを明らかにし、解法として所与条件から、容易に初期値を求めうる線図を示し、さらに任意のパラメータについて、等温反応操作の最適条件を見出す簡便な図解法を示している。最後に、温度に上限、下限がある場合の最適な滞留時間について考察を加え、1:1 次反応について図解法と計算結果を示している。また、並発反応に関する Horn, F. の結果の

二、三の誤謬を訂正している。

槽列反応装置では、 $m:n$ 次反応の最適条件の考察を行ない、補助変数の最適値を見出す図解法を明らかにし、これによって必要な状態変数、操作変数の最適値が単純な計算で得られることを示している。さらに活性化エネルギーの比 α と反応次数 m, n で定まるパラメータ $S = m\alpha - n$ を用いて、任意のパラメータでの並発反応の特徴を分類し、管型反応装置との比較を行なっている。

第4章では、触媒活性の劣化を伴う、 n 次不可逆反応、可逆反応および触媒劣化のタイプを三つの基本型に分類した反応系について回分式反応装置での最適温度操作を、最短反応時間問題として定式化し最大値原理を用いて解を求めている。

劣化速度モデルとしては、劣化速度を n 次不可逆反応、可逆反応などの主反応の転化率に依存せず、温度と活性度のみの関数として表わした Froment 型と呼ばれているものを用いている。触媒劣化の型については触媒劣化機構のあり方から考察して (I) 不純物質が反応を阻害する場合 (II) 反応物質が反応を阻害する場合 (III) 生成物質が反応を阻害する場合に分類している。

不可逆反応では、解析解を求め、任意パラメータでの最適値を求める簡便な図解法を示している。最適温度操作は反応進行とともに温度を上昇させ、上限温度になれば等温操作になることから反応操作領域を非等温操作領域、等温操作領域、操作不可能領域に分割し、各領域の境界線を求める方法を明らかにしている。

可逆反応では、活性化エネルギーの比の大きさによって操作領域を6分割し、各々の場合の最適温度分布の傾向を、等温操作における反応性と触媒活性の劣化性との相互関係の考察や、最適条件式から明らかにしている。この場合、反応進行とともに、温度を上昇させる場合、その逆の場合、およびそれらの複合したU形、 \cap 形が存在することを示し、それらの存在条件を明らかにし、さらに最適解を求めるに当たっての初期温度の推定が出来るような反応操作可能領域図を示している。また劣化のない場合との比較検討を行なっている。

触媒劣化の型については、上記の3つの型について、厳密解と解析解の求め易い近似解とを比較し、近似の精度を明らかにしている。さらに多くの計算例によって、各型の最適温度操作の特徴を明らかにしている。

第5章では、評価関数の考察を行ない、STY (空時得率) の拡張に相当するような感度的意味をもつ評価関数 ($P = (X_L - X_0)^\alpha / L^\beta$; α, β は定数パラメータ, X_L はプラント出力, X_0 はプラント入力, L はプラント容量) を提案し、その応用を示している。

この評価関数の特徴は、(1) 指数 α, β の物理的意味が、最適解においてはプラント出力のプラント容量に関する感度となること、(2) 任意の反応操作が最適となるような α, β が存在し、これは逆最適制御問題と関連していること、である。応用としては、等温反応操作のもとで、単純反応、逐次反応、並発反応、自触媒反応等を管型および槽型反応装置について、これらのパラメータと最適条件との関係をまとめ、さらにこの評価関数が経済的評価に対しても用いることができることを示している。さらに階層的評価関数の応用を展開している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、反応系、反応装置の特性によって最適温度条件がどのようになるかを、理想操作としての見地から一連の反応系に対して考察し、反応系、反応装置の最適性の特徴を出来るだけ一般的に表現して、実際の設計、操作に役立たしめたものであり、得られた成果は次の通りである。

1. 従来の研究では、主として個別的な反応系が取り扱われており、特に反応次数は一次の場合が多く、種々のパラメータにある特定な値を与えた反応系に対して最適解を求めているのに対して、本論文では、反応次数、反応速度定数に関連するパラメータなどの反応系に固有なパラメータと、管長、反応槽容積、反応時間、出口転化率などの設計条件、操作条件から与えられるパラメータとを、最適化計算ならびに最適解の一般的表現に便利な数式モデルとして表現しなおすことにより、単純反応、並発反応、触媒劣化を伴う反応等について、系の最適条件の特徴を明らかにしている。

2. 一般化されたモデルの最適解を求めるにあたっては、パラメータ、定数を含んだ形で、できうるかぎり解析的に最適操作条件を明白にし、得られた最適条件式の特徴を分析して、最適解を線図で表現することによって、簡単に最適値を見出すことを可能ならしめている。また図的表現によって、最適条件と反応系、反応装置の特性、最適操作可能領域などの関係を明らかにしている。

3. 単純反応の最適温度操作に関する性質をパラメータ偏差の最適管長への影響という観点から考察し、反応装置の設計・操作にあたって、実際の設計データについて、どのパラメータを精度良く測定する必要があるかを定量的に示唆している。またパラメータ偏差の取り扱い方として2通りの方法があることを示し、それぞれの計算方法を明らかにし、正逆一次反応について詳細に図示し、パラメータ偏差の複合効果のあることならびにその程度、パラメータ偏差の正負の方向性の最適性への影響の相違などについて定量的に明らかにしている。

4. $m:n$ 次並発反応での最適操作条件を、栓流型管型反応装置と完全混合型槽列反応装置とに対して、反応次数の m, n と活性化エネルギーの比 α とによって分類し、最適値を求める図解法を提示するとともに、多くの計算結果から最適操作条件の特徴を明らかにしている。

5. 触媒劣化を伴う反応系の最適操作条件については、不可逆反応に対しては解析解を求め、可逆反応に対しては、最適条件の傾向を、活性化エネルギーの比 α, β の値の大きさによって6分類し、それぞれの α, β の領域に対する最適特性を明らかにしている。さらに触媒劣化機構の面から劣化モデルとして3つの型に分類し、各々についての最適操作条件の一般的特徴を明らかにしている。

6. 反応操作に対する最適化問題における解の一般的結論を得ることを目的として、新しい一つの評価関数を提案し、この評価関数の持っているパラメータの値が最適解の重要な特徴と密接な関係にあることを明らかにするとともに、この結果の反応操作への応用を示している。

以上要するに、本論文は、化学反応装置の最適設計、操作に関して、一般化されたモデルとして反応系を取り扱うことによって、任意の系の値や条件での最適操作の特性を明らかにしたものであり、学術上工業上寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。