

界面における化学反応のモデル
— 解の漸近挙動について —

阪大・理 飯田 雅人 (Masato Iida)
早大・理工 山田 義雄 (Yoshio Yamada)
龍大・理工 四ッ谷 晶二 (Shoji Yotsutani)

§1. 序

次のような非線形境界条件をもつ放物型方程式系を考える。

$$(P) \left\{ \begin{array}{ll} a(x)u_z = u_{xx}, & (x, z) \in (0, 1) \times (0, \infty), \\ b(x)v_z = v_{xx}, & (x, z) \in (0, 1) \times (0, \infty), \\ c(x)w_z = w_{xx}, & (x, z) \in (0, 1) \times (0, \infty), \\ u_x(0, z) = R_1(u(0, z), v(0, z), w(0, z)), & z \in (0, \infty), \\ v_x(0, z) = R_2(u(0, z), v(0, z), w(0, z)), & z \in (0, \infty), \\ w_x(0, z) = R_3(u(0, z), v(0, z), w(0, z)), & z \in (0, \infty), \\ u_x(1, z) = 0, & z \in (0, \infty), \\ v_x(1, z) = 0, & z \in (0, \infty), \\ w_x(1, z) = 0, & z \in (0, \infty), \\ u(x, 0) = u_0(x) \geq 0, & x \in (0, 1), \end{array} \right.$$

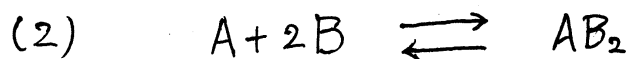
$$\begin{cases} v(x, 0) = v_0(x) \geq 0, & x \in (0, 1), \\ w(x, 0) = w_0(x) \geq 0, & x \in (0, 1). \end{cases}$$

ここに、 $a(x) = k_1(1-x^2)$, $b(x) = k_2(1-x^2)$, $c(x) = k_3(1-x^2)$;
 $R_1 = \alpha_1 R$, $R_2 = \alpha_2 R$, $R_3 = -\alpha_3 R$. ただし、 k_i , α_i は正の定数
 ($i=1, 2, 3$) とし、 $R = R(u, v, w)$ は適当な条件をみたす十分滑
 らかな関数であり ([YY], [IYY] 参照). 具体例として我々
 が念頭においているのは、

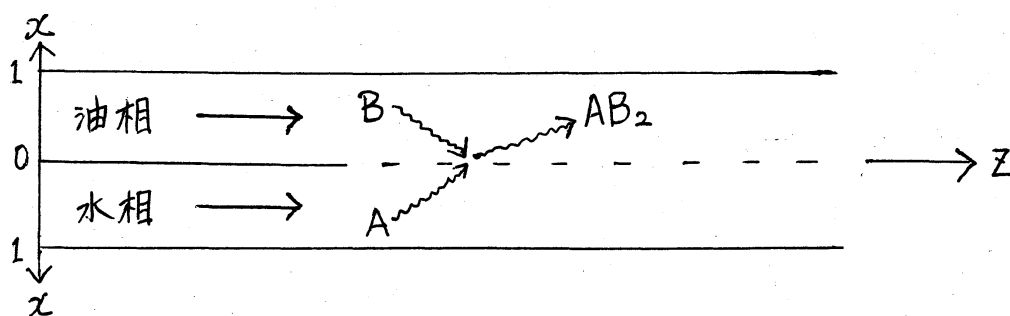
$$(1) \quad R(u, v, w) = \frac{uv^2 - w}{(1+v+uv)^2}$$

である。

この問題は、もともと化学工学で実際に扱われるある反応
 の機構を解明する必要性から生じたものである。化学物質 A
 の溶けた水と化学物質 B の溶けた油をそれぞれ水平方向に流
 し、この二つの平板流を接触させた状況を考える。この条件
 のもとで A と B が反応式



に従って水相と油相の境界面においてのみ反応して新たな物
 質 AB_2 に変化する様子を単純化したモデルが (P) である。(
 次頁の図を参照) u, v, w はそれぞれ A, B, AB_2 の濃度を表す。
 また、(P) は時間によらない「定常」流の状態を扱っており、
 独立変数 x, z は図のように指定した空間変数であることに注



意しておく。(詳細については [YY], [KKKN], [YKN] を参照。)

しかしながら、本稿では、このような化学的背景とは別に、純粋に数学的な興味から (P) の解の $z \rightarrow \infty$ における漸近挙動を調べることにする。化学的には、 z が十分大きくなると (2) で表される可逆な反応は化学平衡に達し、 A, B, AB_2 の濃度は x によらない正の定数になると考えられる。我々はこの推論が数学的に正しいことを証明し、さらに解のすべての導関数が $z \rightarrow \infty$ において一様に収束することを導くことに成功した (§2 の Theorem 1, 2)。また、証明の副産物として、 u, v, w の z に関する各階の導関数に対応した Lyapunov 関数を次々と無限に構成していく手続きを開発した (§3 参照)。

§2. 主結果

(P) の大域解の存在については、既に次の結果が得られている ([YY])。

Proposition u_0, v_0, w_0 が条件

$$\begin{cases} u_0, v_0, w_0 \in L^\infty(0,1), \\ u_0(x) \geq 0, v_0(x) \geq 0, w_0(x) \geq 0, \quad x \in (0,1) \end{cases}$$

をみたすとき、(P) の解 (u, v, w) は一意に存在して次の性質をもち：

(i) $u, v, w \in C^\infty([0,1] \times (0,\infty)) \cap C([0,\infty); L^2(0,1))$.

(ii) すべての $(x, z) \in [0,1] \times (0,\infty)$ について

$$0 \leq u(x, z), v(x, z), w(x, z) \leq M = M(u_0, v_0, w_0)$$

が成り立つ。ただし、 M は x と z に無関係な正の定数である。

この命題によって保証される大域解 (u, v, w) は $z \rightarrow \infty$ において定常状態 $(u_\infty, v_\infty, w_\infty)$ に一様に収束する：

Theorem 1 (u, v, w) を (P) の解とすると、 $z \rightarrow \infty$ のとき

$$u(x, z) \Longrightarrow u_\infty,$$

$$v(x, z) \Longrightarrow v_\infty,$$

$$w(x, z) \Longrightarrow w_\infty$$

が成り立つ。ここで \Longrightarrow は x に関して一様な収束を意味する。また、 $(u_\infty, v_\infty, w_\infty)$ は定数であり、次の定常問題の解として一意に定まる。

$$(SP) \begin{cases} u_\infty \geq 0, v_\infty \geq 0, w_\infty \geq 0, \\ R(u_\infty, v_\infty, w_\infty) = 0, \end{cases}$$

$$\begin{cases} \frac{u_\infty}{\alpha_1} \int_0^1 a dx + \frac{w_\infty}{\alpha_3} \int_0^1 c dx = \frac{1}{\alpha_1} \int_0^1 u_0 a dx + \frac{1}{\alpha_3} \int_0^1 w_0 c dx \equiv E, \\ \frac{v_\infty}{\alpha_2} \int_0^1 b dx + \frac{w_\infty}{\alpha_3} \int_0^1 c dx = \frac{1}{\alpha_2} \int_0^1 v_0 b dx + \frac{1}{\alpha_3} \int_0^1 w_0 c dx \equiv F. \end{cases}$$

(u, v, w) の収束に関しては、さらに強い結果が成り立つ。

Theorem 2 (u, v, w) を (P) の解とすると、(i, j) ≠ (0, 0) なるすべての非負の整数 i, j に対して、 $z \rightarrow \infty$ のとき

$$\begin{aligned} \frac{\partial^{i+j} u}{\partial x^i \partial z^j} &\longrightarrow 0, \\ \frac{\partial^{i+j} v}{\partial x^i \partial z^j} &\longrightarrow 0, \\ \frac{\partial^{i+j} w}{\partial x^i \partial z^j} &\longrightarrow 0, \end{aligned}$$

が成り立つ。

Theorem 3 Theorem 1, 2 における収束の速さはすべて指数関数的である。より正確には、(u₀, v₀, w₀) から定まる正の定数 λ があって、 $z \rightarrow \infty$ において

$$\begin{aligned} \|u - u_\infty\|_\infty &= O(e^{-\lambda z}), \\ \left\| \frac{\partial^{i+j} u}{\partial x^i \partial z^j} \right\|_\infty &= O(e^{-\lambda z}), \quad i, j \geq 0; (i, j) \neq (0, 0) \end{aligned}$$

が成り立つ。(v, w についても同様。)

Remark 1 定常問題 (SP) の 3, 4 番目の条件は「質量保存則

↓ :

$$(3) \begin{cases} \frac{1}{\alpha_1} \int_0^1 u(x, z) a(x) dx + \frac{1}{\alpha_3} \int_0^1 w(x, z) c(x) dx = E, & z \in [0, \infty), \\ \frac{1}{\alpha_2} \int_0^1 v(x, z) b(x) dx + \frac{1}{\alpha_3} \int_0^1 w(x, z) c(x) dx = F, & z \in [0, \infty) \end{cases}$$

において、形式的に $z \rightarrow \infty$ としたものである。(3) の左辺は

$[0, 1] \times \{z\}$ における「重みのついた」質量を表し、(3)の右辺は $[0, 1] \times \{0\}$ における「重みのついた」質量を表していると解釈できる。質量保存則自身は、(3)の左辺を z で微分すると 0 になることからわかる。

Remark 2 Theorem 3 に出てくる定数 λ は、(P) を (u_0, v_0, w_0) のまわりで線形化して得られる問題に付随した自己共役作用素の正の最小固有値である。

Remark 3 四宮氏は [S] において、(2) に類似した界面反応



に対して、解が $z \rightarrow \infty$ のとき定常状態に一様収束することを示している。彼の場合は不可逆反応であり、境界条件の R は

$$(4) \quad R(u, v) = u^m v^n$$

となる (w は現れないので、未知関数 2 個に関する方程式系となる)。さらに、長澤氏がこの場合について解の収束の速さを LP-ノルムで評価している ([N])。四宮氏の扱ったモデル (4) と我々の扱ったモデル (1) の違いは R の非負値性にある。

[S] では R の非負値性を活用して議論しているが、我々の場合には (1) からわかるように R の非負値性は期待できないから、四宮氏の方法を適用することはできない。そのため、我々は新たな手法を開発する必要があった。

§ 3. 証明のアイデア

Theorem 1, 2, 3 の証明はエネルギー法に基づいて行われる。key point は、 u, v, w の z に関するすべての導関数に対応した無限個の Lyapunov 関数を構成することである。以下、話を簡単にするために、

- $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha_3 = 1,$
- $R_1 = R_2 = -R_3 = R = \frac{uv^2 - w}{(1+v+uv)^2},$
- $E > 0, F > 0$

を仮定しておく。なお、この節の詳細については [IYY] を参照されたい。

Theorem 1 は次の 5 段階に分けて証明される。

Step 1 (エネルギー不等式の導出) : (P) の解 (u, v, w) は次の三つの不等式を満足する。

$$(I) \quad \frac{d}{dz} \int_0^1 \{s(u, u_z) a + 2s(v, v_z) b + s(w, w_z) c\} dx + \eta \int_0^1 (u_x^2 + v_x^2 + w_x^2) dx + \eta \{u(0, z)v(0, z)^2 - w(0, z)\}^2 \leq 0, \quad z > 0,$$

$$(II) \quad \frac{d}{dz} \int_0^1 (u_x^2 p + v_x^2 q + w_x^2 r) dx + 2 \int_0^1 (u_x^2 ap + v_x^2 bq + w_x^2 cr) dx = \int_0^1 (u_x^2 + v_x^2 + w_x^2) dx, \quad z > 0,$$

$$(III) \quad \frac{d}{dz} \int_0^1 (u_x^2 a + v_x^2 b + w_x^2 c) dx + \int_0^1 (u_{zx}^2 + v_{zx}^2 + w_{zx}^2) dx \leq \frac{1}{\eta} \int_0^1 (u_x^2 ap + v_x^2 bq + w_x^2 cr) dx, \quad z > 0.$$

ここに、 η は z によらない (小さな) 正の定数であり、関数 Δ, p, q, r はそれぞれ

$$\Delta(\xi, \xi_0) = \int_{\xi_0}^{\xi} (\log t - \log \xi_0) dt = \xi (\log \xi - \log \xi_0) - (\xi - \xi_0),$$

$$p(x) = \int_0^x y a(y) dy, \quad q(x) = \int_0^x y b(y) dy, \quad r(x) = \int_0^x y c(y) dy$$

で与えられる。

$$\text{Step 2: } \lim_{z \rightarrow \infty} \int_0^1 (u_x^2 + v_x^2 + w_x^2) dx = 0.$$

Step 3: $\{u(\cdot, z)\}_{z \geq 1}, \{v(\cdot, z)\}_{z \geq 1}, \{w(\cdot, z)\}_{z \geq 1}$ はそれぞれ一様有界かつ同程度連続な非負値関数族である。

Step 4: 適当な部分列 $\{z_j\}_{j=1,2,3,\dots}$ を選べば、 $j \rightarrow \infty$ のとき

$$u(x, z_j) \Longrightarrow u_\infty,$$

$$v(x, z_j) \Longrightarrow v_\infty,$$

$$w(x, z_j) \Longrightarrow w_\infty.$$

$$\text{Step 5: } \lim_{z \rightarrow \infty} \int_0^1 \{(u - u_\infty)^2 a + (v - v_\infty)^2 b + (w - w_\infty)^2 c\} dx = 0.$$

最後に、Step 3 と Step 5 を組み合わせると、 u, v, w が (部分列によらずに) 一様収束することがわかる。

Step 1 において右辺に現れる項はどれも一つ前の不等式の左辺に現れているから、(I), (II), (III) を組み合わせると様々な収束性を導くことができる。この「(I), (II), (III) を組み合わせて使う」という点が我々のアイデアの根本である。(なお、(I)に現れる $\Delta(\cdot, \cdot)$ は [R] の 168 ページや、Boltzmann 方程式の研究で

も使われる有名な関数であり、重み関数 p, q, r は四宮氏が発見したものである。) この考えをさらに進めると、後述するように u, v, w の高階導関数に関するエネルギー不等式を無限個構成できるのである。

ここで、Step 1 のエネルギー不等式の構成方法を説明しておく。まず、 u, v, w の方程式にそれぞれ $\log u - \log u_\infty$, $2(\log v - \log v_\infty)$, $\log w - \log w_\infty$ を掛けて足し合わせたものを部分積分すると、等式

$$\begin{aligned} & \frac{d}{dz} \int_0^1 \{ \alpha(u, u_\infty) a + 2\alpha(v, v_\infty) b + \alpha(w, w_\infty) c \} dx \\ (I') \quad & + \int_0^1 \left(\frac{u_x^2}{u} + 2\frac{v_x^2}{v} + \frac{w_x^2}{w} \right) dx \\ & + \{ \log u(0, z) v(0, z)^2 - \log w(0, z) \} R(u(0, z), v(0, z), w(0, z)) = 0, \quad z > 0 \end{aligned}$$

が得られる。(I) は (I') と u, v, w の非負・一様有界性からわかる。

また、 u, v, w の方程式にそれぞれ αu_x , αv_x , αw_x を掛けて足し合わせたものを部分積分すると (II) が得られる。さらに、(I) を z で 1 回微分して得られる u_z, v_z, w_z の方程式にそれぞれ u_z, v_z, w_z を掛けて足し合わせたものを部分積分すると、

$$\begin{aligned} (III) \quad & \frac{1}{2} \frac{d}{dz} \int_0^1 (u_z^2 a + v_z^2 b + w_z^2 c) dx + \int_0^1 (u_{zx}^2 + v_{zx}^2 + w_{zx}^2) dx \\ & = - \{ u_z(0, z) + v_z(0, z) + w_z(0, z) \} \frac{d}{dz} R(u(0, z), v(0, z), w(0, z)), \quad z > 0 \end{aligned}$$

が得られる。(III) と u, v, w の一様有界性および Sobolev 型の埋め込み定理から、(III) が導かれる。

次に、Theorem 2 の証明の要旨を述べる。今度は (I), (II), (III) に対応するエネルギー不等式が可算無限個必要になる。

等式 (II) を導くときと同様にして、(P) を z で m 回微分して得られる $\frac{\partial^m u}{\partial z^m}$, $\frac{\partial^m v}{\partial z^m}$, $\frac{\partial^m w}{\partial z^m}$ の方程式にそれぞれ $x \frac{\partial^{m+1} u}{\partial x \partial z^m}$, $\frac{\partial^{m+1} v}{\partial x \partial z^m}$, $x \frac{\partial^{m+1} w}{\partial x \partial z^m}$ を掛けて部分積分を行うことにより、

$$\begin{aligned} & \frac{d}{dz} \int_0^1 (|\frac{\partial^{m+1} u}{\partial x \partial z^m}|^2 p + |\frac{\partial^{m+1} v}{\partial x \partial z^m}|^2 q + |\frac{\partial^{m+1} w}{\partial x \partial z^m}|^2 r) dx \\ (II)_m & + 2 \int_0^1 (|\frac{\partial^{m+1} u}{\partial z^{m+1}}|^2 ap + |\frac{\partial^{m+1} v}{\partial z^{m+1}}|^2 bq + |\frac{\partial^{m+1} w}{\partial z^{m+1}}|^2 cr) dx \\ & = \int_0^1 (|\frac{\partial^{m+1} u}{\partial x \partial z^m}|^2 + |\frac{\partial^{m+1} v}{\partial x \partial z^m}|^2 + |\frac{\partial^{m+1} w}{\partial x \partial z^m}|^2) dx, \quad z > 0 \\ & \qquad \qquad \qquad (m = 1, 2, 3, \dots) \end{aligned}$$

が得られる。また、(III) を導くときと同様の方針で、(P) を m 回微分して得られる $\frac{\partial^m u}{\partial z^m}$, $\frac{\partial^m v}{\partial z^m}$, $\frac{\partial^m w}{\partial z^m}$ の方程式にそれぞれ $\frac{\partial^m u}{\partial z^m}$, $\frac{\partial^m v}{\partial z^m}$, $\frac{\partial^m w}{\partial z^m}$ を掛けて部分積分を行うと、(多少混み入った議論が必要にはなるが、) 埋め込み定理の助けを借りて

$$\begin{aligned} & \frac{d}{dz} \int_0^1 (|\frac{\partial^m u}{\partial z^m}|^2 a + |\frac{\partial^m v}{\partial z^m}|^2 b + |\frac{\partial^m w}{\partial z^m}|^2 c) dx \\ & + \int_0^1 (|\frac{\partial^{m+1} u}{\partial x \partial z^m}|^2 + |\frac{\partial^{m+1} v}{\partial x \partial z^m}|^2 + |\frac{\partial^{m+1} w}{\partial x \partial z^m}|^2) dx \\ (III)_m & \leq \frac{1}{\eta_m} \left\{ \sum_{j=1}^m \int_0^1 (|\frac{\partial^j u}{\partial z^j}|^2 ap + |\frac{\partial^j v}{\partial z^j}|^2 bq + |\frac{\partial^j w}{\partial z^j}|^2 cr) dx \right. \\ & \quad \left. + \sum_{j=1}^{m-1} \int_0^1 (|\frac{\partial^{j+1} u}{\partial x \partial z^j}|^2 + |\frac{\partial^{j+1} v}{\partial x \partial z^j}|^2 + |\frac{\partial^{j+1} w}{\partial x \partial z^j}|^2) dx \right\}, \quad z > 0 \end{aligned}$$

$$(m = 2, 3, 4, \dots)$$

を導くことができる。ただし、 η_m は z によらない正の定数である。

こうして得られたエネルギー不等式(I), (II), (III), $\{(II)_m\}_{m=1,2,3,\dots}$, $\{(III)_m\}_{m=2,3,4,\dots}$ をうまく組み合わせて使うと、

$$(5) \quad \int_1^\infty \left\{ \int_0^1 \left(\left| \frac{\partial^m u}{\partial z^m} \right|^2 a + \left| \frac{\partial^m v}{\partial z^m} \right|^2 b + \left| \frac{\partial^m w}{\partial z^m} \right|^2 c \right) dx \right. \\ \left. + \left| \frac{d}{dz} \int_0^1 \left(\left| \frac{\partial^m u}{\partial z^m} \right|^2 a + \left| \frac{\partial^m v}{\partial z^m} \right|^2 b + \left| \frac{\partial^m w}{\partial z^m} \right|^2 c \right) dx \right| \right\} dz < \infty, \\ m = 1, 2, 3, \dots$$

を順次導くことができる。例えば $m=1$ の場合は以下のように示される：(I)を z について積分して得られる

$$\int_1^\infty \int_0^1 (u_x^2 + v_x^2 + w_x^2) dx dz < \infty$$

と(II)を用いて、

$$(6) \quad \int_1^\infty \int_0^1 (u_z^2 a p + v_z^2 b q + w_z^2 c r) dx dz < \infty$$

がわかり、さらに(6)と(III)から、

$$(7) \quad \int_1^\infty \int_0^1 (u_{zx}^2 + v_{zx}^2 + w_{zx}^2) dx dz < \infty$$

が得られる。したがって、(6), (7)と埋め込み定理を用いて

$$\int_1^\infty \int_0^1 (u_z^2 a + v_z^2 b + w_z^2 c) dx dz < \infty$$

を得る。また、(I)から $\frac{d}{dz} \int_0^1 \{ \mathcal{A}(u, u_{00})a + 2\mathcal{A}(v, v_{00})b + \mathcal{A}(w, w_{00})c \} dx \leq 0$

だから、

$$\int_1^\infty \left| \frac{d}{dz} \int_0^1 \{ \mathcal{A}(u, u_{00})a + 2\mathcal{A}(v, v_{00})b + \mathcal{A}(w, w_{00})c \} dx \right| dz$$

$$\begin{aligned}
&= - \int_1^\infty \frac{d}{dz} \int_0^1 \{ \mathcal{A}(u, u_\infty) a + 2 \mathcal{A}(v, v_\infty) b + \mathcal{A}(w, w_\infty) c \} dx dz \\
&\leq \int_0^1 \{ \mathcal{A}(u(\cdot, 1), u_\infty) a + 2 \mathcal{A}(v(\cdot, 1), v_\infty) b + \mathcal{A}(w(\cdot, 1), w_\infty) c \} dx < \infty.
\end{aligned}$$

同様に、(I)+(II) $\times\eta$ を考えると、

$$\begin{aligned}
&\int_1^\infty \left| \frac{d}{dz} \int_0^1 \{ \mathcal{A}(u, u_\infty) a + 2 \mathcal{A}(v, v_\infty) b + \mathcal{A}(w, w_\infty) c \} dx \right. \\
&\quad \left. + \eta \frac{d}{dz} \int_0^1 (u_x^2 p + v_x^2 q + w_x^2 r) dx \right| dz < \infty
\end{aligned}$$

が、(I)+(II) $\times\eta$ + (III) $\times\eta^2$ を考えると、

$$\begin{aligned}
&\int_1^\infty \left| \frac{d}{dz} \int_0^1 \{ \mathcal{A}(u, u_\infty) a + 2 \mathcal{A}(v, v_\infty) b + \mathcal{A}(w, w_\infty) c \} dx \right. \\
&\quad \left. + \eta \frac{d}{dz} \int_0^1 (u_x^2 p + v_x^2 q + w_x^2 r) dx \right. \\
&\quad \left. + \eta^2 \frac{d}{dz} \int_0^1 (u_z^2 a + v_z^2 b + w_z^2 c) dx \right| dz < \infty
\end{aligned}$$

が得られる。したがって、

$$\int_1^\infty \left| \frac{d}{dz} \int_0^1 (u_z^2 a + v_z^2 b + w_z^2 c) dx \right| dz < \infty$$

が成り立ち、(5)で $m=1$ としたものが得られる。 $m \geq 2$ の場合も同様の議論を行うことにより、示すことができる。

こうして(5)までわかってしまえば、拡散方程式の性質を利用して Theorem 2 の結論を得るのは易しい。

Theorem 3 の証明も、基本的にはエネルギー不等式 (I), (II), (III), $\{(II)_m\}$, $\{(III)_m\}$ に基づくことになるのだが、議論が少々複雑になるため、ここでは割愛する。

Remark $a(x)$, $b(x)$, $c(x)$ が $x=1$ において退化していることは、Theorem 1, 2, 3 の証明において、本質的な障害にはならない。これは、Sobolev 型の埋め込み定理 「任意の $\varepsilon > 0$ に対して

正の定数 C_ε があって、

$$\|u\|_\infty^2 \leq \varepsilon \int_0^1 |u_x|^2 dx + C_\varepsilon \int_0^1 |u|^2 a dx \quad (u \in H^1(0,1))$$

が成り立つ」のおかげである。

References

- [IYY] Iida, M., Yamada, Y. and Yotsutani, S., Asymptotic behavior for a mathematical model on chemical interfacial reactions, in preparation.
- [KKKN] Kawano, Y., Kusano, K., Kondo, K. and Nakashio, F., Extraction rate of acetic acid by long-chain alkylamine in horizontal rectangular channel, 化学工学論文集 9 (1983), 44-51.
- [N] Nagasawa, T., The rate of convergence for chemical interfacial reaction models, preprint.
- [R] Rothe, F., "Global Solutions of Reaction-Diffusion Systems," Lec. Notes in Math. vol. 1072, Springer, 1984.
- [S] Shinomiya, Y., 非線型な境界条件をもつ拡散方程式の解の $t \rightarrow \infty$ に於ける漸近安定性について, 大阪大学修士論文 (1990).
- [YKN] Yoshizuka, K., Kondo, K. and Nakashio, F.,

Effect of hydrophobicity of extractant on extraction kinetics of copper with N-8-quinolylsulfonamide, J. Chem. Eng. Japan 19 (1986), 396-400.

[YY] Yamada, Y. and Yotsutani, S., A mathematical model on chemical interfacial reactions, Japan J. Appl. Math. 7 (1990), 369-398.