

拡散を含んだある化学反応方程式 について

京大 工 三村昌泰

§ 1 序

一般に化学反応には、拡散を伴う系が数多く見受けられるが、従来、化学工学等では、空間的には定常な系として考え、それらを表わす方程式を常微分方程式として取り扱ってきたことは良く知られている。しかしながら実際問題として、空間的にも非定常であり、更に境界条件が導入される場合がしばしばある。そのために、どうしても空間的、時間的変化を考察する必要があり、系を偏微分方程式として取り扱わなければならない。そこで、ここではこうした問題の中で、その一例である、拡散する物質と拡散しない物質が反応する（immobilizing reaction）^[1]場合の初期値問題を考えることにする。このような I-R 系を表わす式を数学的にみれば、ある意味で、発展方程式系の中で、放物型にも双曲型にも属さない方程式と考えられるから、ここでは「縮退」した拡散系とでも呼ぼう。

問題

次式で与えられる初期値問題を $R^T = (-\infty < x < \infty, 0 \leq t \leq T)$ において考える。

$$(1.1) \quad \begin{cases} \frac{\partial u_1}{\partial t} = d \frac{\partial^2 u_1}{\partial x^2} - d_1 u_1 u_4 - d_2 u_1 u_3 \\ \frac{\partial u_2}{\partial t} = \frac{\partial^2 u_2}{\partial x^2} - d_3 u_2 u_4 + d_2 u_1 u_3 \\ \frac{\partial u_3}{\partial t} = d_3 u_2 u_4 - d_2 u_1 u_3 \\ \frac{\partial u_4}{\partial t} = -d_1 u_1 u_4 - d_3 u_2 u_4 \end{cases}$$

初期条件

$$(1.2) \quad \begin{cases} u_1(x, 0) = u_{10}(x) \geq 0 \\ u_2(x, 0) = u_{20}(x) \geq 0 \\ u_3(x, 0) = u_{30}(x) \geq 0 \\ u_4(x, 0) = u_{40}(x) \geq 0 \end{cases}$$

但し、係数 d, d_1, d_2, d_3 はすべて正の定数とする。

ここでは差分法を用いることにより、解の存在、一意性を証明することを目的とする。

§ 2 準備

まず (1.1) 式、(1.2) 式に対する差分方程式として次式を考える。

$$(2.1) \quad \begin{cases} u_1^{n+1,j} = P(u_1^{n,j}) - k(d_1 u_1^{n,j} u_4^{n,j} + d_2 u_1^{n,j} u_3^{n,j}) \\ u_2^{n+1,j} = P(u_2^{n,j}) - k(d_3 u_2^{n,j} u_4^{n,j} - d_2 u_1^{n,j} u_3^{n,j}) \\ u_3^{n+1,j} = u_3^{n,j} + k(d_3 u_2^{n,j} u_4^{n,j} - d_2 u_1^{n,j} u_3^{n,j}) \\ u_4^{n+1,j} = u_4^{n,j} - k(d_1 u_1^{n,j} u_4^{n,j} + d_3 u_2^{n,j} u_4^{n,j}) \end{cases}$$

初期条件

$$(2.2) \quad \begin{cases} u_1^{0,j} = u_{10}^j \\ u_2^{0,j} = u_{20}^j \\ u_3^{0,j} = u_{30}^j \\ u_4^{0,j} = u_{40}^j \end{cases}$$

但し、 $u_i^{n,j} = u_i(jh, nR)$, $i=1, 2, 3, 4$ (今後 u_i = 書けば, $i=1, 2, 3, 4$ を指すものとする。) $u_i^{n,j}$ は $R_n^T = (R^T \in$ 格子間隔 (h, R) で区切った格子点座標) において考えることにする。

$$P(u_2^{n,j}) = \lambda u_2^{n,j-1} + (1-2\lambda) u_2^{n,j} + \lambda u_2^{n,j+1}, \quad \lambda = \frac{k}{h^2} = \text{定数}$$

j, n はすべて整数であり、 n, h, R は非負とする。

§ 3 解の存在

証明方法は本質的に Courant-Friedrichs-Lewy [3], 並びに F. John [5] に従っている。

先ず、次の補助定理を証明するために示しておく。

補助定理 1 差分方程式 (2.1) 式 (2.2) 式の解が安定であるための十分条件は格子間隔比 λ が

$$1 - 2d\lambda \geq 0 \quad (d \gg 1) \quad \text{あるいは} \quad 1 - 2\lambda \geq 0 \quad (0 < d < 1)$$

を満足することであり、その時、差分解は次式のように評価される。

$$(3.1) \quad \begin{cases} |u_1^n| \leq |u_{10}| \\ |u_2^n| \leq |u_{10}| + |u_{20}| \\ |u_3^n| \leq |u_{30}| + |u_{40}| \\ |u_4^n| \leq |u_{40}| \end{cases} \quad \begin{array}{l} \text{任意の } n, j \text{ に対して} \\ \text{且つ } u_i^{n,j} \geq 0 \end{array}$$

$$\text{但し, } |u_i^n| = \text{Sup}_j |u_i^{n,j}|$$

次に x に関する差分商, $(u_i^{n,j})_x = (u_i^{n,j+1} - u_i^{n,j})/h$ についての方程式系を (2.1) 式 (2.2) 式から導くと次式で与えられる。

$$(3.2) \quad \begin{cases} (u_1^{n+1,j})_x = P_1((u_1^{n,j})_x) - k \left[d_1 (u_4^{n,j+1} (u_1^{n+1,j})_x + u_1^{n+1,j} (u_4^{n,j})_x) + d_2 (u_3^{n,j+1} (u_1^{n+1,j})_x + u_1^{n+1,j} (u_3^{n,j})_x) \right] \\ (u_2^{n+1,j})_x = P_2((u_2^{n,j})_x) - k \left[d_3 (u_4^{n,j+1} (u_2^{n+1,j})_x + u_2^{n+1,j} (u_4^{n,j})_x) + d_2 (u_3^{n,j+1} (u_2^{n+1,j})_x + u_2^{n+1,j} (u_3^{n,j})_x) \right] \\ (u_3^{n+1,j})_x = (u_3^{n,j})_x + k \left[d_3 (u_2^{n,j+1} (u_4^{n+1,j})_x + u_4^{n+1,j} (u_2^{n,j})_x) + d_2 (u_1^{n,j+1} (u_3^{n+1,j})_x + u_3^{n+1,j} (u_1^{n,j})_x) \right] \end{cases}$$

$$(u_4^{n+1,j})_x = (u_4^{n,j})_x - k \left[d_1 (u_1^{n,j+1})_x (u_4^{n,j})_x + u_4^{n,j} (u_1^{n,j})_x + d_3 (u_2^{n,j+1})_x (u_4^{n,j})_x + u_4^{n,j} (u_2^{n,j})_x \right]$$

初期条件

$$(3.3) \quad (u_i^{0,j})_x = (u_{i0})_x$$

(3.2) 式から次式を得る。

$$(3.4) \quad \begin{cases} | (u_1^{n+1})_x | \leq | (u_1^n)_x | + kDM_0 \left[| (u_4^n)_x | + | (u_3^n)_x | \right] \\ | (u_2^{n+1})_x | \leq | (u_2^n)_x | + kDM_0 \left[| (u_4^n)_x | + | (u_3^n)_x | + | (u_1^n)_x | \right] \\ | (u_3^{n+1})_x | \leq | (u_3^n)_x | + kDM_0 \left[| (u_4^n)_x | + | (u_2^n)_x | + | (u_1^n)_x | \right] \\ | (u_4^{n+1})_x | \leq | (u_4^n)_x | + kDM_0 \left[| (u_1^n)_x | + | (u_2^n)_x | \right] \end{cases}$$

$$\text{但し、} M_0 = \max_i \left\{ \sup_{R_n^+} |u_i^{n,j}| \right\} \quad D = \max \{ d_1, d_2, d_3 \}$$

故に (3.3) 式 (3.4) 式から次の評価式が導かれる。

$$(3.5) \quad \sum_{i=1}^4 | (u_i^n)_x | \leq e^{4DM_0 T} \left(\sum_{i=1}^4 | (u_{i0})_x | \right)$$

さらに、 t に関する差分商、 $(u_i)_t = (u_i^{n+1,j} - u_i^{n,j})/k$ についての方程式系を (2.1) 式 (2.2) 式から導くと、やはり (3.5) 式と同様な評価式が次式として与えられる。

$$(3.6) \quad \sum_{i=1}^4 |(u_i^m)_t| \leq e^{4DM_0 T} \left(\sum_{i=1}^4 |(u_{i0})_t| \right) \\ \leq e^{4DM_0 T} (|(u_{10})_{xx}| + |(u_{20})_{xx}| + 8DM_0^2)$$

(3.5)式, (3.6)式から, もしも初期値 $u_{10}, u_{20}, u_{30}, u_{40}$ がそれぞれ $\beta^2, \beta^2, \beta^1, \beta^1$ クラスに属していれば, $(u_i^m)_x, (u_i^m)_t$ はともに h に無関係に有界となる。同様な議論により, もしも $u_{10}, u_{20}, u_{30}, u_{40}$ がそれぞれ $\beta^4, \beta^4, \beta^3, \beta^3$ クラスに属していれば, $u_i^m, (u_i^m)_x, (u_i^m)_{xx}, (u_i^m)_{xxx}, (u_i^m)_t, (u_i^m)_{tx}, (u_i^m)_{tt}, (u_i^m)_{txx}$ はすべて h に無関係に有界となる。

次に格子基底座標 R_h^T を可算個の格子基底にするために, 以下のことを行う。 h_0 を任意の固定した正数とし, 正整数 m に対して, 格子間隔 ($h_m = h_0/2^m, k_m = 2h_m$) の格子点座標 $R_{h_m}^T$ を作り, $R_{h_0}^T = \bigcup_m R_{h_m}^T$ と定義すれば, この集合 $R_{h_0}^T$ は可算個で, R^T において稠密な集合となる。

こうしておいて, $R_{h_m}^T$ で定義される格子点函数 u_{im}^m から成る列 $\{u_{im}^m\}$ の中から適当な部分列 $\{u_{i m_s}^m\}$ を取りだせば,

$$(3.7) \quad \lim_{m_s \rightarrow \infty} u_{i m_s}^m = u_i(x, t) \quad \text{in } R_{h_0}^T$$

となる。次に $R_{h_0}^T$ 上の2点 $(x = jh_m, t = nk_m), (x' = j'h_m, t' = n'k_m)$ において定義される $u_{im}^m, u_{i'm}^m$ に対して; $(u_i^m)_x, (u_i^m)_t$ がともに h に無関係に有界とすれば, 次式を得る。

$$(3.8) \quad u_{i,m}^{n,j} - u_{i,m}^{n',j'} = h_m \sum_{\nu=1}^{j-j'} (u_{i,m}^{n,j'+\nu-1})_x + k_m \sum_{\mu=1}^{i-n'} (u_{i,m}^{n'+\mu-1,j'})_t \\ = O(x-x') + O(t-t')$$

ここで $m_s \rightarrow \infty$ とすれば,

$$u_i(x,t) - u_i(x',t') = O(x-x') + O(t-t') \quad \text{in } R_{h\infty}^T$$

を得る。上式から、極限函数 $u_i(x,t)$ は $R_{h\infty}^T$ において一様連続となるから、その定義域は R^T まで拡張される。そしてそこにおいて有界で一様連続となる。更に、 $(u_i^{n,j})_{xx}$ が一様に有界であれば、次式を得る。

$$\frac{u_{i,m}^{n,j} - u_{i,m}^{n',j'}}{x' - x} = (u_{i,m}^{n,j})_x + O(x' - x)$$

ここで $m_s \rightarrow \infty$ とすれば、次式を得る。

$$(3.9) \quad \frac{u_i(x',t) - u_i(x,t)}{x' - x} = v_i(x,t) + O(x' - x) \quad \text{in } R_{h\infty}^T$$

但し、 $\lim_{m_s \rightarrow \infty} (u_{i,m}^{n,j})_x = v_i(x,t)$

ここで、 $(u_i^{n,j})_{xx}$, $(u_i^{n,j})_{xt}$ がともに h に無関係に有界であれば、

$v_i(x,t)$ は上と同様な議論により、 $R_{h\infty}^T$ において一様連続となるから、(3.9)式は R^T において成立つ。そこで $x' \rightarrow x$ とす

れば、

$$\frac{\partial}{\partial x} u_i(x,t) = v_i(x,t) \quad \text{in } R^T$$

を得る。

もしも初期値 $u_{10}, u_{20}, u_{30}, u_{40}$ がそれぞれ $\beta^4, \beta^4, \beta^3, \beta^3$ クラスに属しているとき仮定すれば、同様な方法により、 $(u_i^{n,j})_{x,t}$, $(u_i^{n,j})_t$ がそれぞれ $\frac{\partial^2}{\partial x^2} u_i(x,t), \frac{\partial}{\partial t} u_i(x,t)$ に収束し、 R^T において有界で一様連続となることがわかる。最後に、(2.1)式(2.2)式において、格子間隔 $\varepsilon (h=h_m, k=k_m)$ として、 $m_s \rightarrow \infty$ とすれば、 $u_i(x,t)$ は (1.1)式 (1.2)式 $\in R_{h_0}^T$ において満たし、更に一様連続性より R^T においてそれらを満たすことがわかる。こうして極限函数 $u_i(x,t)$ が (1.1)式 (1.2)式の解になることが証明される。しかしながら、以上の証明では、必要以上に高階の導函数の連続性を初期値に対して要求した。これに対して、熱方程式の基本解を用い、その性質を利用することにより、初期値 $u_{10}, u_{20}, u_{30}, u_{40}$ がそれぞれ $\beta^2, \beta^2, \beta^1, \beta^1$ クラスに属していれば、(1.1)式(1.2)式の解が存在することがわかる。こうして次の定理を得る。

定理1 もしも初期値 $u_{10}, u_{20}, u_{30}, u_{40}$ が非負で、それぞれ $\beta^2, \beta^2, \beta^1, \beta^1$ クラスに属していれば、問題 (1.1)式 (1.2)式の真の解が存在し、その時

$$\begin{aligned} u_1(x,t), u_2(x,t) &\in \mathcal{E}_t^0(\beta^2) \cap \mathcal{E}_t^1(\beta^0) \\ u_3(x,t), u_4(x,t) &\in \mathcal{E}_t^1(\beta^1) \cap \mathcal{E}_t^2(\beta^0) \end{aligned} \quad \text{in } R^T$$

を満たす。

§ 4. 解の一貫性

補助定理 2 もしも $u_i(x, t)$ が (1.1) 式, (1.2) 式の解

であり、且つ

$$u_1(x, t), u_2(x, t) \in \mathcal{E}_t^0(\beta^2) \cap \mathcal{E}_t^1(\beta^0)$$

$$u_3(x, t), u_4(x, t) \in \mathcal{E}_t^1(\beta^0)$$

を満足し、更に $u_i^{n,j}$ が補助定理 1 の仮定のもとで、(1.1) 式 (1.2) 式の解とすれば、任意の ε に対して次式を満足する $\delta(\varepsilon)$ が存在する。

$$\sum_{i=1}^4 \|u_i^{n,j} - u_i(x, t)\| < \varepsilon, \quad 0 < k, h \leq \delta \quad \text{in } R_h^+$$

但し $x = jh, t = nk, \quad \|u_i\| = \sup_{R_h^+} |u_i(x, t)|$

(証明) 先ず $u_i(x, t)$ に対して、仮定より次式を得る。

$$(4.1) \quad u_i(x, t+k) = P_i(u_i(x, t)) - k \left[a_1 u_1(x, t+k) u_4(x, t) + a_2 u_1(x, t+k) \right. \\ \left. \times u_3(x, t) \right] + o(k)$$

ここで、(2.1) 式の α -式から (4.1) 式を両辺それぞれ、差し引き $S_i^{n,j} = u_i^{n,j} - u_i(x, t)$ と置けば次式を得る。

$$(4.2) \quad S_i^{n+1,j} = P_i(S_i^{n,j}) - k \left[(a_1 u_4^{n,j} + a_2 u_3^{n,j}) S_i^{n+1,j} + f_i \right] + o(k)$$

但し

$$(4.3) \quad f_i = (a_1 S_4^{n,j} + a_2 S_3^{n,j}) u_1(x, t+k)$$

同様な方法により、 $S_2^{n,j}$, $S_3^{n,j}$, $S_4^{n,j}$ に対する方程式を得ることが出来る。

$$(4.4) \quad S_2^{n+1,j} = P_2(S_2^{n,j}) - k \left[d_3 u_4^{n,j} S_2^{n+1,j} + f_2 \right] + o(k)$$

$$(4.5) \quad S_3^{n+1,j} = S_3^{n,j} - k \left[d_2 u_1^{n,j} S_3^{n+1,j} + f_3 \right] + o(k)$$

$$(4.6) \quad S_4^{n+1,j} = S_4^{n,j} - k \left[(d_1 u_1^{n,j} + d_3 u_2^{n,j}) S_4^{n+1,j} + f_4 \right] + o(k)$$

但し

$$(4.7) \quad f_2 = d_3 u_2(x, t+k) S_4^{n,j} - d_2 (u_1(x, t+k) S_3^{n,j} + u_3 S_1^{n+1,j})$$

$$(4.8) \quad f_3 = d_2 u_3(x, t+k) S_1^{n,j} - d_3 (u_4(x, t+k) S_2^{n,j} + u_2 S_4^{n+1,j})$$

$$(4.9) \quad f_4 = (d_1 S_1^{n,j} + d_3 S_2^{n,j}) u_4(x, t+k)$$

初期条件

$$(4.10) \quad S_i^{0,j} \equiv 0$$

そこで、 $S_i^{n,j}$ に対して次式の差分方程式系を考える。

$$(4.11) \quad \left[\begin{array}{l} y_1^{n+1,j} = P_1(y_1^{n,j}) + k(F_1 + G_1) \\ y_2^{n+1,j} = P_2(y_2^{n,j}) + k(F_2 + G_2) \\ y_3^{n+1,j} = y_3^{n,j} + k(F_3 + G_3) \\ y_4^{n+1,j} = y_4^{n,j} + k(F_4 + G_4) \end{array} \right.$$

初期条件

$$(4.12) \quad y_i^{0,j} \equiv 0$$

但し、 F_i は R_h^T における F_i の上限であり、 G_i は R_h における G_i の上限であり、 $k \rightarrow 0$ の時、0 に Tend するものである。

(4.11) 式、(4.12) 式から容易に次式を得る。

$$(4.13) \quad y_i^{n,j} = t [F_i + G_i]$$

一方、(4.2) 式 ~ (4.12) 式から

$$(4.14) \quad |S_i^{n,j}| \leq y_i^{n,j}$$

が導かれるから、結局次式を得る。

$$(4.15) \quad \|S_i^{n,j}\| \leq T [F_i + G_i]$$

上式の両辺を i に 2 いて加えると、

$$(4.16) \quad \sum_{i=1}^4 \|S_i^{n,j}\| \leq \sum_{i=1}^4 T [F_i + G_i]$$

となる。他方、(4.3) 式、(4.7) 式 ~ (4.9) 式から次式が導かれる。

$$(4.17) \quad \sum_{i=1}^4 F_i \leq 3DM_0 \left\{ \sum_{i=1}^4 \|S_i^{n,j}\| \right\}$$

(4.16) 式、(4.17) 式より、

$$(4.18) \quad (1 - 3DM_0 T) \sum_{i=1}^4 \|S_i^{n,j}\| \leq T \sum_{i=1}^4 G_i$$

上式から、明らかなるように $T_1 < 1/3DM_0$ とすれば、次式が導かれる。

$$(4.19) \quad \lim_{k \rightarrow 0} \sum_{i=1}^4 \|S_i^{n,j}\| = 0 \quad \text{in } R_h^{T_1}.$$

ここで、 $T_1 \in \mathbb{R}^T$ 決定する定数 M_0 は \mathbb{R}^T での $u_i(x, t)$ の maximum norm である。たことに注意すれば、 $T_1 \in \mathbb{R}^T$ 新しい初期時刻と考
え、 T_1 と同様な方法を行えば、 $T_1 \leq t \leq T_2$ において (4.19) 式
を満足するような T_2 が取れる。更に、有限回同じ操作を続けて
行けば、 \mathbb{R}^T において

$$\lim_{R \rightarrow 0} \sum_{i=1}^4 \|S_i^{n,d}\| = 0$$

が証明される。

定理 2 もしも、補助定理 2 の仮定のもとに、(1.1)
式、(1.2) 式の真の解が存在するならば、その解は一意的
である。

(証明) (1.1) 式、(1.2) 式を満足する任意の 2 つの真の解 $w_i^1(x, t)$ 、 $w_i^2(x, t)$ とすれば

$$\sum_{i=1}^4 \|w_i^1 - w_i^2\| \leq \sum_{i=1}^4 \left\{ \|w_i^1 - u_i^{n,d}\| + \|w_i^2 - u_i^{n,d}\| \right\} \quad \text{in } \mathbb{R}_h^T$$

但し、 $u_i^{n,d}$ は (2.1) 式 (2.2) 式の差分解である。

補助定理 2 より

$$\lim_{k \rightarrow 0} \sum_{i=1}^4 \|w_i^1 - w_i^2\| = 0 \quad \text{in } \mathbb{R}_{\infty}^T$$

となり、 w_i^1, w_i^2 の一様連続性より \mathbb{R}^T において $w_i^1(x, t) \equiv w_i^2(x, t)$ が容易に証明される。

§ 5 結 び

以上で初期値問題 (1.1) 式, (1.2) 式に対する解の存在, 一意性が証明されたが, まだ問題は少し残っている。オーに, ここで考えた系は二次反応であると仮定しているが, 高次反応の場合にはどうか? オーに, 実際的には混合問題として考えられる場合が多いが, それについては?
これらについては現在, まだ未解決である。

参考文献

- [1] R. Arima and Y. Hasegawa; On Global Solutions for Mixed Problem of a Semi-linear Differential Equation. Proceeding of the Japan Acad. Vol. 39, No. 10, (1963)
- [2] P. L. T. Brian, etc; Penetration Theory for a Gas Absorption Accompanied by a Second Order Chemical Reaction. A. I. Ch. E. Journal. 7. 226 (1961)
- [3] R. Courant, K. Friedrichs and H. Lewy; Ueber die partiellen Differenzgleichungen der mathematischen Physik, Math. Annalen, vol. 100. (1928)
- [4] J. Crank; "Mathematics of Diffusion." Clarendon Press, Oxford, (1955)
- [5] J. Fritz; On Integration of Parabolic Equations by Difference Methods. C. P. A. M. vol 5 (1952)
- [6] G. E. Forsythe and W. R. Wasow; Finite Difference Methods for Partial Differential Equations. John Wiley and Sons INC. (1960)
- [7] T. Nogi; Private communication (1964)