

УДК 66.023:681.5

©2012. В. Н. Ткаченко, О. В. Тубольцева

ИДЕНТИФИКАЦИЯ ПАРАМЕТРОВ НЕЛИНЕЙНОЙ МОДЕЛИ ХИМИЧЕСКОГО РЕАКТОРА

Рассмотрена задача параметрической идентификации нелинейной модели химического реактора. Особенностью задачи является нелинейность представления в уравнении одного из идентифицируемых параметров. Применение метода наименьших квадратов сводит задачу к нахождению корней нелинейной системы.

Ключевые слова: химический реактор, нелинейная модель, параметрическая идентификация, метод наименьших квадратов.

1. Введение. Для создания новых технологий производства нанодисперсных порошков функциональных материалов и технологий специальных химических реактивов необходима разработка математических моделей, адекватно описывающих физико-химические процессы, происходящие на различных стадиях процесса. Идентификация параметров позволяет производить подстройку модели к реальному процессу, используя наблюдаемые данные.

2. Построение модели. В качестве математической модели реактора принимается система [1], состоящая из уравнений материального и теплового баланса:

$$\begin{cases} \frac{dC_x}{dt} = -AC_x^n e^{-\frac{E}{RT}} + \frac{q}{V}C_{x_0} \\ \frac{dT}{dt} = \frac{AH}{c_1\rho_1}C_x^n e^{-\frac{E}{RT}} - \frac{hS}{c_1\rho_1V}(T - T_C) - \frac{c_2\rho_2q}{c_1\rho_1V}(T - T_B) \end{cases}, \quad (1)$$

где t – время, C_x – текущая концентрация реагента и T – температура реакционной системы, R – универсальная газовая постоянная, A – предэкспоненциальный множитель уравнения Аррениуса, n – порядок реакции, E – энергия активации, C_{x_0} – концентрация раствора подаваемого реагента, q – объемная скорость подачи реагента, V – объем реакционной системы, S – поверхность теплопередачи, h – коэффициент теплопередачи, H – энтальпия реакции, c_1 и c_2 – теплоемкости, соответственно, системы и раствора подаваемого реагента, ρ_1 и ρ_2 – плотности реакционной системы и раствора подаваемого реагента, T_C и T_B – температуры внутренней стенки реактора и раствора подаваемого реагента.

Для системы, моделирующей процесс растворения железа в азотной кислоте, значения параметров представлены в таблице 1.

Динамика данного процесса представлена изменениями концентрации железа (рис. 1) и температуры раствора (рис. 2).

Таблица 1. Параметры исследуемой системы

Физические величины	Значения параметров	Единицы измерения
Предэкспоненциальный множитель уравнения Аррениуса, A	1000	$\text{м}^3/(\text{кг} \cdot \text{с})$
Порядок реакции, n	1,5	
Универсальная газовая постоянная, R	8,31	$\text{Дж}/(\text{моль} \cdot \text{К})$
Энергия активации, E	15000	$\text{Дж}/\text{моль}$
Коэффициент теплопередачи, h	18	$\text{Дж}/(\text{м}^2 \cdot \text{с} \cdot \text{К})$
Объемная скорость подачи реагента, q	0,001	$\text{м}^3/\text{с}$
Объем реакционной системы, V	0,229074	м^3
Концентрация раствора подаваемого реагента, C_{x_0}	30	$\text{кг}/\text{м}^3$
Теплоемкость системы, c_1	4100	$\text{Дж}/(\text{кг} \cdot \text{К})$
Теплоемкость раствора подаваемого реагента, c_2	4100	$\text{Дж}/(\text{кг} \cdot \text{К})$
Плотность реакционной системы, ρ_1	1200	$\text{кг}/\text{м}^3$
Плотность раствора подаваемого реагента, ρ_2	1020	$\text{кг}/\text{м}^3$
Энтальпия системы, H	300000	$\text{Дж}/\text{моль}$
Поверхность теплопередачи, S	1,178097	м^2
Температура внутренней стенки реактора, T_C	300	К
Температура раствора подаваемого реагента, T_B	330	К

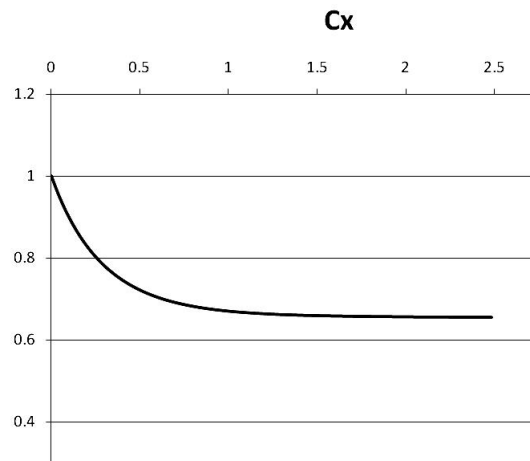


Рис. 1. Концентрация

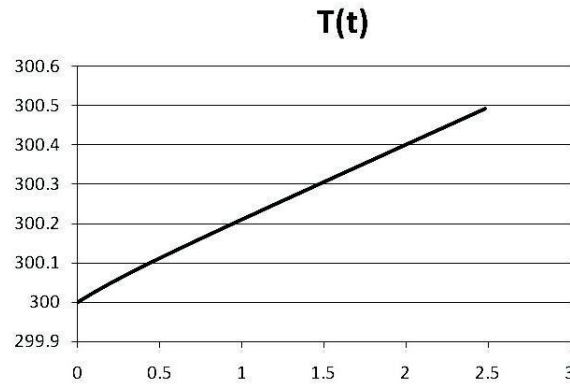


Рис. 2. Температура

3. Идентификация параметров модельной системы. Пусть значения величин A , q , V , C_{x_0} , c_1 , ρ_1 , c_2 , ρ_2 , S , T_C , T_B , H известны. Энергия активации E и коэффициент теплопередачи h – неизвестные параметры, которые будем идентифицировать методом наименьших квадратов. Для нелинейной системы (1) проведем идентификацию вектора параметров

$$\bar{a} = (E, h),$$

учитывая, что параметр E – входит нелинейно, а параметр h – линейно.

Для упрощения записи системы (1) обозначим:

$$C = C_x, \quad \alpha = \frac{q}{V}C_{x_0}, \quad \eta = \frac{H}{c_1\rho_1}, \quad \beta = \frac{S}{c_1\rho_1V}, \quad \gamma = \frac{c_2\rho_2q}{c_1\rho_1V}, \quad (2)$$

тогда система (1), с учетом (2), примет вид:

$$\begin{cases} \frac{dC}{dt} = -AC^n e^{-\frac{E}{RT}} + \alpha \\ \frac{dT}{dt} = \eta AC^n e^{-\frac{E}{RT}} - h\beta(T - T_C) - \gamma(T - T_B) \end{cases}. \quad (3)$$

Выполним конечно-разностную аппроксимацию системы (3) с постоянным шагом Δ по времени t :

$$\begin{cases} C_{i+1} = C_i + \Delta \left(-AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} + \alpha \right) \\ T_{i+1} = T_i + \Delta \left(\eta AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} - h\beta(T_i - T_C) - \gamma(T_i - T_B) \right) \end{cases}, \quad (4)$$

массивы C_i и T_i есть измерения концентрации и температуры в i -й момент времени, где $i = \overline{1, M+1}$, M – количество интервалов на временной оси и также число итераций в (4).

Тогда невязка конечно-разностных уравнений определяется следующим образом:

$$J = \sum_{i=1}^M \left\{ \left[C_{i+1} - C_i + \Delta(AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} - \alpha) \right]^2 + \left[T_{i+1} - T_i - \Delta \left(\eta AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} - h\beta(T_i - T_C) - \gamma(T_i - T_B) \right) \right]^2 \right\}. \quad (5)$$

Определим необходимые условия экстремума функционала (5)

$$\begin{cases} \frac{\partial J}{\partial E} = 0 \\ \frac{\partial J}{\partial h} = 0 \end{cases}.$$

Продифференцировав (5) по компонентам вектора $\bar{a} = (E, h)$, получим

$$\begin{aligned} \frac{\partial J}{\partial E} &= 2 \sum_{i=1}^M \left[\left(C_{i+1} - C_i + \Delta(AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} - \alpha) \right) \left(-\frac{\Delta AC_i^n}{RT_i} e^{-\frac{E}{RT_i}} \right) + \right. \\ &\quad \left. + \left(T_{i+1} - T_i + \Delta(\beta(T_i - T_C)h + \gamma(T_i - T_B) - \eta AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}}) \right) \frac{\Delta \eta AC_i^n}{RT_i} e^{-\frac{E}{RT_i}} \right], \\ \frac{\partial J}{\partial h} &= 2 \sum_{i=1}^M \left(T_{i+1} - T_i + \Delta(\beta(T_i - T_C)h + \gamma(T_i - T_B) - \eta AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}}) \right) \Delta \beta(T_i - T_C). \end{aligned}$$

Найдем параметры E, h как решения системы

$$\begin{cases} \sum_{i=1}^M \left[\left(C_{i+1} - C_i + \Delta(AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} - \alpha) \right) \left(-\frac{\Delta AC_i^n}{RT_i} e^{-\frac{E}{RT_i}} \right) + \right. \\ \left. + \left(T_{i+1} - T_i + \Delta(\beta(T_i - T_C)h + \gamma(T_i - T_B) - \eta AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}}) \right) \frac{\Delta \eta AC_i^n}{RT_i} e^{-\frac{E}{RT_i}} \right] = 0, \\ \sum_{i=1}^M \left(T_{i+1} - T_i + \Delta(\beta(T_i - T_C)h + \gamma(T_i - T_B) - \eta AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}}) \right) \Delta \beta(T_i - T_C) = 0. \end{cases}$$

Сократим на $\Delta^2 A/R > 0$ и на $\beta \Delta^2 > 0$, соответственно, первое и второе уравнение, получим систему

$$\begin{cases} \sum_{i=1}^M \left(\alpha - \frac{C_{i+1} - C_i}{\Delta} + \left(\frac{T_{i+1} - T_i}{\Delta} + \gamma(T_i - T_B) \right) \eta \right) \frac{C_i^n}{T_i} e^{-\frac{E}{RT_i}} - \\ - (1 + \eta^2) A \sum_{i=1}^M \frac{C_i^{2n}}{T_i} e^{-\frac{2E}{RT_i}} + \beta \eta \sum_{i=1}^M \frac{(T_i - T_C) C_i^n}{T_i} e^{-\frac{E}{RT_i}} h = 0, \\ \sum_{i=1}^M \left(\frac{T_{i+1} - T_i}{\Delta} + \gamma(T_i - T_B) - \eta AC_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} \right) (T_i - T_C) + \\ + \beta h \sum_{i=1}^M (T_i - T_C)^2 = 0. \end{cases} \quad (6)$$

Исключим переменную h , выразив из второго уравнения системы (6),

$$h = \sum_{i=1}^M \left[\left(\eta A C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} - \frac{T_{i+1} - T_i}{\Delta} - \gamma(T_i - T_B) \right) (T_i - T_C) \right] \left(\beta \sum_{i=1}^M (T_i - T_C)^2 \right)^{-1} \quad (7)$$

и подставим (7) в первое уравнение системы (6)

$$\begin{aligned} & \sum_{i=1}^M \frac{C_i^n}{T_i} e^{-\frac{E}{RT_i}} \left(\frac{C_i - C_{i+1}}{\Delta} + \frac{\eta(T_{i+1} - T_i)}{\Delta} + \alpha + \eta\gamma(T_i - T_B) - (1 + \eta^2) A C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} \right) + \\ & + \sum_{i=1}^M \frac{(T_i - T_C)}{T_i} C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} \left\{ \sum_{i=1}^M \left[\left(\frac{T_i - T_{i+1}}{\Delta} - \gamma(T_i - T_B) \right) (T_i - T_C) \right] + \right. \\ & \left. + \eta A \sum_{i=1}^M (T_i - T_C) C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} \right\} \eta \left(\sum_{i=1}^M (T_i - T_C)^2 \right)^{-1} = 0. \end{aligned} \quad (8)$$

Полученное уравнение вида $f(E) = 0$ решим численными методами. Можно вычислять при помощи стандартных методов решения нелинейных уравнений. В частности, метод Ньютона (метод касательных) весьма эффективен для решения подобных задач, поскольку обеспечивает квадратичную сходимость: число значащих цифр результата удваивается на каждой итерации.

Будем считать, что уравнение $f(E) = 0$ на отрезке $[a; b]$ имеет изолированный корень E^* ($f(a) \cdot f(b) < 0$, $f(E)$ и $f'(E)$ – непрерывные, $f'(E)$ сохраняет знак на $[a; b]$).

В качестве решения примем E_k – k -тое приближение корня, для которого выполнено косвенное условие

$$|E_k - E_{k-1}| < \varepsilon,$$

где ε – необходимая точность.

Для начального приближения $E_0 = a$ (или $E_0 = b$) проверим условие

$$f(E_0) \cdot f''(E_0) > 0.$$

Следующее приближение корня будем искать в виде

$$E_{k+1} = E_k - \frac{f(E_k)}{f'(E_k)}, \quad k = 0, 1, 2, \dots$$

Найдем производные аналитически:

$$\begin{aligned} f'(E) = \frac{1}{R} \sum_{i=1}^M & \left[\left(\frac{C_{i+1} - C_i}{\Delta} - \frac{\eta(T_{i+1} - T_i)}{\Delta} - \alpha - \right. \right. \\ & \left. \left. - \eta\gamma(T_i - T_B) \right) \frac{C_i^n}{T_i^2} e^{-\frac{E}{RT_i}} + 2(1 + \eta^2) A \frac{C_i^{2n}}{T_i^2} e^{-\frac{2E}{RT_i}} \right] - \end{aligned}$$

$$- \left[\sum_{i=1}^M \frac{(T_i - T_C)}{T_i^2} C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} \cdot \sum_{i=1}^M \left(\frac{T_i - T_{i+1}}{\Delta} - \gamma(T_i - T_B) + \eta A C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} \right) (T_i - T_C) + \right. \\ \left. + \eta A \cdot \sum_{i=1}^M \left(\frac{(T_i - T_C) C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}}}{T_i} \right)^2 \right] \cdot \frac{\eta}{R} \left(\sum_{i=1}^M (T_i - T_C)^2 \right)^{-1},$$

$$f''(E) = \frac{-1}{R^2} \sum_{i=1}^M \left[\left(\frac{C_{i+1} - C_i}{\Delta} - \frac{\eta(T_{i+1} - T_i)}{\Delta} - \alpha - \right. \right. \\ \left. \left. - \eta\gamma(T_i - T_B) + 4A(1 + \eta^2) \cdot C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} \right) \frac{C_i^n}{T_i^3} e^{-\frac{E}{RT_i}} \right] + \\ + \left[\sum_{i=1}^M \frac{(T_i - T_C)}{T_i^3} C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} \sum_{i=1}^M \left((T_i - T_C) \left(\frac{T_i - T_{i+1}}{\Delta} - \gamma(T_i - T_B) + \eta A C_i^n e^{-\frac{E}{RT_i}} \right) \right) \right] + \\ + \eta A \sum_{i=1}^M \left[\left(1 + 2e^{-\frac{E}{RT_i}} \right) \frac{(T_i - T_C)^2 C_i^{2n}}{T_i^3} e^{-\frac{E}{RT_i}} \right] \frac{\eta}{R^2} \left(\sum_{i=1}^M (T_i - T_C)^2 \right)^{-1}.$$

Идентификацию параметров проведем при различных уровнях зашумления наблюдаемых значений концентрации и температуры. Прежде всего рассмотрим случай отсутствия шума, когда в качестве наблюдаемых значений рассматриваются модельные значения, полученные выше (рис.1, 2). В таблице 2 представлены итерации последовательного приближения E_k – значений параметра E и h_k – соответствующие значения параметра h , а также значения невязки при данных параметрах. Невязка $J(E_k, h_k)$ убывает до нулевого значения.

Таблица 2. Идентификация с заданной точностью $\epsilon = 0,0000001$

№	Значение параметра E	Значение параметра h	Невязка $J(E, h)$
1	10000.000000000	-18233.489193736248	8.7706888048496676200
2	11155.047805304	-10416.159012178454	2.8663550007603522100
3	12250.686062206	-5697.175216713754	0.8599138246718196500
4	13247.485017380	-2878.319129638247	0.2208374339611106900
5	14082.230987621	-1246.210002875800	0.0420732587373657100
6	14667.796384066	-386.948752184523	0.0043167807092513100
7	14943.480587566	-47.145965994726	0.0001117201255012500
8	14997.950806219	15.663731256128	0.0000001436816410300
9	14999.990235510	17.988872135607	0.0000000000032597100
10	14999.999965361	17.999960524200	0.000000000000000400
11	14999.99999877	17.99999860215	0.000000000000000000
12	15000.000000000	17.99999999531	0.000000000000000000
13	15000.000000000	18.00000000024	0.000000000000000000

Отметим, что истинные значения параметров $E = 15000$ и $h = 18$ совпадают с полученными значениями с точностью 0,000000001 каждый.

4. Идентификация с шумом. Следующим этапом проведем идентификацию параметров на основе данных, имеющих зашумление типа белый шум. Зашумлять будем либо наблюдаемые значения концентрации, либо значения температуры, а также оба варианта. Кроме того, рассмотрим различные уровни шума, попытаемся определить максимально допустимые СКО белого шума, при которых идентификация параметров является корректной.

В таблице 3 представлены результаты идентификации при различных уровнях СКО шума по концентрации и по температуре, 1 и 2 столбец, соответственно. При начальном значении параметра $E_0 = 10000$ рассчитаны значения параметра E , значения параметра h и соответствующие значения невязки, полученные на 20-й итерации (так как с заданной точностью $\varepsilon = 0,0000001$, необходимо минимум 13 итераций). Значение математического ожидания равно 0.

Значения невязки малы во всех рассмотренных случаях. Наибольшие значения наблюдаются в строках № 2, 3 и 8, 9, когда по Сх СКО от значения 0,05 и выше. Результаты идентификации отличаются от реальных таким образом, что

по E :

$$\delta = 15.602293981 \text{ (строка 2),}$$

$$\delta = 13.372034174 \text{ (стр. 3),}$$

$$\delta = 15.603741021 \text{ (стр. 8),}$$

$$\delta = 15.602446730 \text{ (стр. 9)}$$

и, соответственно, наибольшие значения отклонений параметра h :

$$\delta = 17.725260009756 \text{ (стр. 2),}$$

$$\delta = 15.279996147415 \text{ (стр.3),}$$

$$\delta = 22.825040866441 \text{ (стр. 8),}$$

$$\delta = 18.263590579086 \text{ (стр. 9).}$$

Отметим, что неточности аппаратуры значительно ниже уровня шумов рассмотренных вычислительных экспериментов.

Таблица 3. Идентификация с шумом

№	СКО шума по Сх	СКО шума по Т	Полученное значение параметра E	Значение параметра h	Невязка $J(E, h)$
1	0.01	—	14998.240926003	15.994611018873	0.00000815851
2	0.05	—	15015.602293981	35.725260009756	0.00063737248
3	0.1	—	14986.627965826	2.720003852585	0.00047365726
4	—	0.0001	15000.000187324	18.664291731223	0.00000000260
5	—	0.0005	15000.001438087	23.099780934269	0.00000015330
6	—	0.001	15000.000151804	18.538330577543	0.00000000171
7	0.01	0.0001	14998.241113196	16.658902751210	0.00000816114
8	0.05	0.0005	15015.603741021	40.825040866441	0.00063752425
9	0.1	0.001	15015.602446730	36.263590579086	0.00063737403

5. Выводы. В работе рассмотрена задача идентификации параметров нелинейной модели химического реактора. Задача решена методом наименьших квадратов, который сводит задачу к решению системы нелинейных уравнений относительно идентифицируемых параметров. Выполнены вычислительные эксперименты решения задачи при различных шумовых воздействиях на измеряемые переменные состояния. В условиях отсутствия шумов измерения задача параметрической идентификации решается практически точно, с увеличением интенсивности шумовых воздействий ошибки решения остаются в пределах, приемлемых для практического использования. Показаны значения шумов, при которых смещения решений достигают значительных величин.

1. Вольтер Б.В., Сальников И.Е. Устойчивость режимов работы химических реакторов. – М.: Химия, 1981. – 198 с.
2. Тубольцева О.В., Раков В.Ф. Анализ математической модели химического реактора полунепрерывного действия для исследования устойчивости. – Наукові праці Донецького національного технічного університету. Серія: "Обчислювальна техніка та автоматизація". – 2011. – 20 (182). – С. 66–73
3. Эйкхофф П. Основы идентификации систем управления. Оценивание параметров и состояния. – М.: Мир, 1975. – 681 с.

V. N. Tkachenko, O. V. Tuboltseva

Identification of Parameters for non linear model by chemical reactor.

The problem of parametric identification of nonlinear models of chemical reactors. The peculiarity of the problem is the representation of non-linearity in the equation of one of the identifiable parameters. Application of the least squares method reduces the problem to finding roots of nonlinear systems.

Keywords: chemical reactor, a nonlinear model, parametric identification, the method of least squares.

В. М. Ткаченко, О. В. Тубольцева

Ідентифікація параметрів нелінійної моделі хімічного реактора.

Розглянуто задачу параметричної ідентифікації нелінійної моделі хімічного реактора. Особливістю задачі є нелінійність подання в рівнянні одного з ідентифікованих параметрів. Застосування методу найменших квадратів зводить задачу до знаходження коренів нелінійної системи.

Ключові слова: хімічний реактор, нелінійна модель, параметрична ідентифікація, метод найменших квадратів.

Ин-т прикл. математики и механики НАН Украины, Донецк
tkachenko@iamm.ac.donetsk.ua
olga.tuboltseva@mail.ru

Получено 30.05.12