

## Beszámoló

Magyar Állami Eötvös Ösztöndíj pályázathoz

**Név:** Virágh Eszter

**Kutatási téma:** Controllability investigations for nonlinear systems

**Fogadó intézmény:** Université Catholique de Louvain (Louvain-la-Neuve, Belgium)

**Konzulens:** Denis Dochain (Full Professor, Honorary Research Director of the FNRS)

A kutatómunka során nemlineáris rendszerek irányíthatóságának vizsgálatával foglalkoztam. Irodalomkutatást követően kémiai és biokémiai rendszerek esetében vizsgáltam, hogyan modellezhetők az egyes folyamatok, és a reakciókörülményektől függően (pl. izoterm/nem izoterm reakció, batch reaktorban vagy CSTR-ben játszódik le a folyamat) melyek a irányíthatóság feltételei. A kapott eredményeket felhasználva példarendszerek (pl. élesztő növekedése, reverzibilis reakció) esetében vizsgáltam, mikor irányíthatók a reakciók. Az alkalmazott eljárásokat a vizsgált példarendszerek esetében Matlab környezetben végeztem el.

## 1. Modell

A biokémiai rendszerek leírásához a következő állapottér modellt használtam [1]. Jelölje  $N$  a komponensek,  $M$  pedig a reakciók számát. A biokémiai reakciók általános dinamikai modellje

$$\frac{d\xi}{dt} = K\varphi(\xi, t) - D\xi - Q(\xi) + F. \quad (1)$$

alakban írható, ahol  $\xi = (\xi_1, \xi_2, \dots, \xi_N)^T$  a komponensek koncentrációit tartalmazza. A koncentrációk időbeli változását a rendszer kinetikája, illetve a rendszer és a külvilág közötti transzportfolyamatok határozzák meg. Az egyenlet jobb oldalán szereplő  $K\varphi(\xi, t)$  kifejezés a reakció kinetikáját írja le, a  $-D\xi - Q(\xi) + F$  kifejezés pedig a komponensek transzportdinamikáját modellezi. A kinetikát leíró részben  $K = [K_{ij}]_{N \times M}$  a hozam

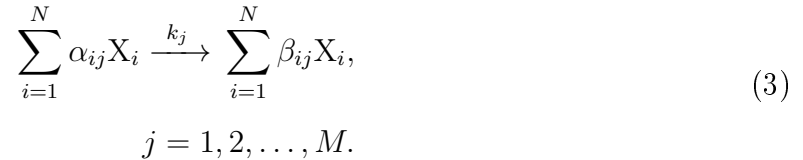
együtthatókból álló mátrixot jelöli. A  $\varphi = (\varphi_1, \varphi_2, \dots, \varphi_M)$  tartalmazza a reakciósebességeket az egyes reakciólépésekhez. A transzportdinamikát leíró részben  $D$  jelöli az  $F_{in}$  beáramlási sebesség és a  $V$  reaktortérfogat arányát. A  $Q = (Q_1, Q_2, \dots, Q_N)^T$  vektormező tartalmazza a kifolyó anyagáram áramlási sebességét az egyes komponensek esetében. Az  $F = (F_1, F_2, \dots, F_N)^T$  vektormező a komponensek betáplálási sebességét tartalmazza.

Kémiai rendszerek esetében az állapottér-modell a biokémiai rendszerekhez hasonló módon adható meg. A kémiai reakciók általános dinamikai modellje

$$\frac{dx}{dt} = \gamma r(x, t) - Dx - Q(x) + F. \quad (2)$$

alakban írható, ahol a  $x = (x_1, x_2, \dots, x_N)^T$  vektormező az egyes anyagfajták koncentrációit tartalmazza. Az egyenletben a transzportdinamikát leíró rész a biokémiai rendszerekkel analóg módon modellezhető, a kinetikát leíró rész azonban kissé eltér. A kinetikát leíró részben  $\gamma$  a sztöchiometriai mátrixot,  $r(x, t)$  pedig a reakciósebesség vektort jelöli.

Biokémiai rendszerek esetében a kinetikát leíró rész csak empirikus módon adható meg. Ezzel szemben kémiai reakciók esetében a sztöchiometriai mátrix és a reakciósebesség a reakcióegyenlet, a koncentrációk és a reakciósebességi együtthatók ismeretében meghatározhatók [1, 2]. Tekintsük a következő általános alakú kémiai reakciót,



A (3) egyenletben  $X_i$ ,  $i \in \{1, 2, \dots, N\}$  a komponenseket jelöli. A  $j$ -edik reakciólépésben az  $X_i$  reaktánsokhoz tartozó sztöchiometriai együtthatót  $\alpha_{ij}$ , az  $X_i$  termékhez tartozó sztöchiometriai együtthatót pedig  $\beta_{ij}$  jelöli. A sztöchiometriai mátrix  $\gamma = [\gamma_{ij}]_{N \times M}$  elemei  $\gamma_{ij} = \beta_{ij} - \alpha_{ij}$  módon számolhatók  $\forall i \in \{1, 2, \dots, N\}$ ,  $\forall j \in \{1, 2, \dots, M\}$ .

Az  $r(x, t)$  reakciósebesség a tömeghatás törvény alapján adható meg. Az  $r(x, t) = (r_1(x, t), r_2(x, t), \dots, r_M(x, t))^T$  vektormező elemei  $r_j(x, t) = k_j \prod_{i=1}^N x_i^{\alpha(i,j)}$ , ahol  $k_j$  a  $j$ -edik reakciólépéshez tartozó reakciósebességi együtthatót jelöli  $\forall j \in \{1, 2, \dots, M\}$ .

Biokémiai folyamatok esetében általában csak kis hőmérséklet változás megengedett, mert a mikroorganizmusok nagy hőmérsékletváltozás esetén elpusztulnak. Így a biokémiai folyamatokat általában izotermnek tekintjük. Ezzel szemben kémiai reakciók esetében nagyobb hőmérséklet változás is végbemehet a folyamat során, így a modellezés során a

hőmérséklet változását leíró egyenletet is figyelembe kell venni [3]. A teljes rendszer

$$\frac{dx}{dt} = \gamma r(x, t) - Dx + u, \quad (4)$$

$$\frac{dT}{dt} = \sum_{j=1}^M h_j r_j(x, T) - D_T T + u_T, \quad (5)$$

alakban írható, ahol  $h_j$  a  $j$ -edik reakciólépés-beli hőmennyiség,  $j \in \{1, 2, \dots, M\}$ ,  $T \in \mathbb{R}_0^+$  a hőmérsékletet jelöli,  $D_T$  pedig a térfogategységre jutó hőáram. Az (4) és (5) egyenletekben  $u$  az anyagáram-bemenet,  $u_T$  pedig a hőmérsékletváltozás bemenetet jelöli.

A reakciók vizsgálata során a reakció alakja mellett az alkalmazott reaktor típusát is figyelembe kell venni. A kutatómunka során két, a gyakorlatban is széleskörűen alkalmazott reaktortípust vizsgáltam (CSTR és batch reaktor) [1, 4, 5].

Egy reaktort batch reaktornak hívunk, ha  $F_{in} = F_{out} = 0$ . Batch reaktorok esetében az (1) és (2) dinamikai modellek transzport dinamikát leíró része 0-val egyenlő, így a dinamikát leíró egyenletek leegyszerűsödnek. Biokémiai rendszerek esetében

$$\frac{d\xi}{dt} = K\varphi(\xi, t), \quad (6)$$

kémiai rendszerek esetében pedig

$$\frac{dx}{dt} = \gamma r(x, t) \quad (7)$$

módon modellezhetők a folyamatok.

Egy reaktort folytonos tartályreaktornak nevezünk (CSTR-continuous stirred tank reactor), ha  $F_{in} = F_{out}$ . CSTR rendszerek esetében a rendszer a (1) és (2) dinamikai modellekkel modellezhetők.

## 2. Irányíthatóság vizsgálata

Először batch, illetve CSTR reaktorban lejátszódó izoterm biokémiai folyamatokat esetében, majd batch, illetve CSTR reaktorban lejátszódó izoterm és nem izoterm kémiai reakciók esetében vizsgáltam, hogy a reakcióköörülményektől függően hogyan pontosíthatók az irányíthatóság feltételei. Ehhez kiindulásként az irányításelméletből ismert rang feltételt használtam [6, 7].

Tekintsük a következő nemlineáris dinamikai rendszert,

$$\dot{\xi} = f(\xi) + g(\xi)u, \quad \xi(0) = \xi^* \in \mathbb{R}^n, \quad (8)$$

ahol  $f, g \in \mathbb{C}^\infty(\mathbb{R}^n, \mathbb{R}^n)$  sima vektormezők,  $u \in \mathbb{R}$  pedig az irányítás bemenet.

**1. Tétel.** *Jelölje a (8) rendszerhez tartozó irányíthatósági disztribúciót  $\Delta_c$ . Az (8) rendszer erősen elérhető az  $\xi^* \in \mathbb{R}^n$  pontban akkor és csak akkor, ha  $\dim \Delta_c(\xi^*) = n$ .*

Az 1. tételben  $n$  a lineárisan független egyenletek számát jelöli, azonban kémiai és biokémiai rendszerek esetében a rendszert leíró differenciálegyenletek általában nem függetlenek egymástól. Lineárisan függő rendszerek esetében a legnagyobb független alrendszer meghatározásához a következő algoritmust használhatjuk [1]. Tekintsünk egy (1) alakú biokémiai reakciót

$$\frac{d\xi}{dt} = K\varphi(\xi, t) - D\xi - Q(\xi) + F. \quad (9)$$

Jelölje  $p$  a  $K$  mátrix rangját. Legyen  $K_f$  ( $p \times N$ ) egy tetszőleges teljes rangú almatrix  $K$ -ből, és jelölje  $K_r$  a megmaradó részmatrixot. Jelölje  $(\xi_f, \xi_r)$ ,  $(Q_f, Q_r)$  és  $(F_f, F_r)$   $\xi$ ,  $Q$  és  $F$  megfelelő partícióit. Ezzel a jelölésmóddal az (1) dinamikai modell felírható

$$\frac{d\xi_f}{dt} = K_f\varphi(\xi_f, t) - D\xi_f - Q_f(\xi_f) + F_f, \quad (10)$$

$$\frac{d\xi_r}{dt} = K_r\varphi(\xi_r, t) - D\xi_r - Q_r(\xi_r) + F_r. \quad (11)$$

alakban. Ehhez létezik  $Z := A_0\xi_f + \xi_r$  állapottranszformáció, ahol  $A_0$  ( $(N - p) \times p$ ) az  $A_0K_f + K_r = 0$  mátrixegyenlet egyértelmű megoldása. Ekkor az (9) rendszerrel lineárisan független ekvivalens rendszer

$$\frac{d\xi_f}{dt} = K_f\varphi(\xi_f, t) - D\xi_f - Q_f(\xi_f) + F_f, \quad (12)$$

$$\frac{dZ}{dt} = -DZ + A_0(F_f - Q_f) + (F_r - Q_r). \quad (13)$$

Ahhoz hogy az irányíthatóság feltételét a reakciókörülményeknek megfelelően pontosítani tudjuk, meg kell határozni, hogyan fejezhető ki a lineárisan független egyenletek száma ( $n$ ) az egyes esetekben.

A következő tétel feltételt ad  $n$  meghatározására CSTR-ben végbemenő folyamatok esetében [3].

**2. Tétel.** *Két egyszerű feltétel az irányíthatóság vizsgálatára CSTR rendszerek esetében:*

- $\text{rang}(g, K) = n$ ,
- $q + \text{rang}(K) \geq n$ ,

ahol  $q$  a bemenetek száma.

**1. Megjegyzés.** *A 2. tétel második feltétele az első feltétel közvetlen következménye, mivel*

$$\text{rang}(g, K) \leq \text{rang}(g) + \text{rang}(K) \leq q + \text{rang}(K). \quad (14)$$

A kutatómunka során meghatároztam hogyan fejezhető ki  $n$  a további esetekben. A kapott eredményeket a következő táblázatban foglaltam össze:

Reakció	Reaktor típusa	$n$
izoterm biokémiai rendszer	batch	$\text{rang}(K)$
izoterm kémiai rendszer	batch	$\text{rang}(\gamma)$
nem izoterm kémiai rendszer	batch	$\text{rang}(\gamma) + 1$
izoterm biokémiai rendszer	CSTR	$\text{rang}(K g)$
izoterm kémiai rendszer	CSTR	$\text{rang}(\gamma g)$

1. táblázat. Kifejezések  $n$ -re

**2. Megjegyzés.** *A táblázatban szereplő kifejezéseket a következő alakban is felírhatjuk:  $n = \text{rang}(K^*|g)$ , ahol*

$$K^* = \begin{cases} K, & \text{izoterm biokémiai rendszerek esetében} \\ \gamma, & \text{izoterm kémiai rendszerek esetében} \\ \begin{pmatrix} \gamma_{N \times M} \\ h_{1 \times M} \end{pmatrix}, & \text{nem izoterm kémiai rendszerek esetében} \end{cases}. \quad (15)$$

### 3. Alkalmazások

A kapott eredményeket speciális alakú példarendszerek esetében alkalmaztam az irányíthatóság feltételének meghatározásához. Először egy biokémiai rendszer esetében (élesztő növekedése), majd egy kémiai rendszerre (reverzibilis reakció) vizsgáltam, mikor irányítható a rendszer. Az élesztő növekedésének vizsgálata során feltételeztem, hogy a folyamat CSTR reaktorban megy vége és izotermnek tekinthető. A reverzibilis reakció vizsgálata során batch rendszert feltételeztem és a reakciót nem izotermnek tekintettem. A szükséges számításokat Matlab környezetben végeztem.

#### 3.1. Élesztő növekedése

Az élesztő növekedése során lejátszódó folyamat a következő reakcióegyenletekkel írható le [1]:



Az (16) egyenlet az élesztő növekedését írja le oxigéndús közegben glükózon, A (17) egyenlet a glükózon végbemenő fermentatív növekedést adja meg, a (18) egyenlet pedig az oxigéndús közegben, etanolon végbemenő növekedést írja le. A fenti egyenletekben

S a glükóz koncentráció,

C az oldott oxigén koncentrációja,

E az etanol koncentráció,

X az élesztő koncentrációja és

P az oldott szén-dioxid koncentráció.

Az egyes folyamatokhoz tartozó reakciósebességeket  $\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3$  jelölik.

A folyamatokat leíró differenciálegyenlet rendszer

$$\begin{pmatrix} \frac{dX}{dt} \\ \frac{dS}{dt} \\ \frac{dE}{dt} \\ \frac{dC}{dt} \\ \frac{dP}{dt} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 \\ -k_1 & -k_2 & 0 \\ 0 & k_4 & -k_3 \\ -k_5 & 0 & -k_6 \\ k_7 & k_8 & -k_9 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} SCX & 0 & 0 \\ 0 & SX & 0 \\ 0 & 0 & ECX \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ \alpha_3 \end{pmatrix} - \\ - D \begin{pmatrix} X \\ S \\ E \\ C \\ P \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ DS_{in} \\ 0 \\ Q_{in} \\ 0 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ Q_i \end{pmatrix}. \quad (19)$$

alakban írható. A P oldott oxigén koncentráció nem jelenik meg a reaktáns oldalon és elhagyja a folyadék fázist ezért az (19) egyenletrendszerből a  $\dot{P}$ -ra vonatkozó egyenlet elhagyható. Ekkor az (19) egyenletrendszer

$$\begin{pmatrix} \frac{dX}{dt} \\ \frac{dS}{dt} \\ \frac{dE}{dt} \\ \frac{dC}{dt} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} SCX\alpha_1 + SX\alpha_2 + ECX\alpha_3 \\ -k_1SCX\alpha_1 - k_2SX\alpha_2 \\ k_4SX\alpha_2 - k_3ECX\alpha_3 \\ -k_5SCX\alpha_1 - k_6ECX\alpha_3 \end{pmatrix} - D \begin{pmatrix} X \\ S - S_{in} \\ E \\ C \end{pmatrix} + Q_{in} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (20)$$

alakúra egyszerűsödik. A (20) rendszerhez tartozó  $f$  drift vektormező és  $g_1, g_2$  control vektormezők

$$f = \begin{pmatrix} SCX\alpha_1 + SX\alpha_2 + ECX\alpha_3 \\ -k_1SCX\alpha_1 - k_2SX\alpha_2 \\ k_4SX\alpha_2 - k_3ECX\alpha_3 \\ -k_5SCX\alpha_1 - k_6ECX\alpha_3 \end{pmatrix}, \quad g_1 = - \begin{pmatrix} X \\ S \\ E \\ C \end{pmatrix}, \quad g_2 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (21)$$

Izoterm biokémiai reakciók esetében a lineárisan független egyenletek száma  $n = \text{rang}(Kg)$  módon számolható, így a 1. tétel szerint az erős elérhetőség feltétele  $\dim \Delta_c = \text{rang}(Kg)$ .

A rang( $Kg$ ) mátrix a következő alakban írható

$$(Kg) = \left( \begin{array}{ccc|cc} 1 & 1 & 1 & X & 0 \\ -k_1 & -k_2 & 0 & S & 0 \\ 0 & k_4 & -k_3 & E & 0 \\ -k_5 & 0 & -k_6 & C & 1 \end{array} \right). \quad (22)$$

A ( $Kg$ ) mátrix rangja  $n = 4$ , így a rendszer erősen elérhető akkor és csak akkor, ha  $\dim \Delta_c = 4$ . Az irányíthatósági disztribúció dimenziójának meghatározásához tekintjük a következő  $g_1$  és  $g_2$  control vektormezőkből, és  $[f, g_2], [[f, g_2], g_1]$  Lie-zárójelekből álló mátrixot:

$$\Theta = (g_1, g_2, [f, g_2], [[f, g_2], g_1]). \quad (23)$$

A mátrix determinánsa  $\det(\Theta) = S_{in} X^2 E \alpha_1 \alpha_3 (k_1 k_3 X + k_3 (S - S_{in}) + k_1 E)$ . A  $\Theta$  mátrix teljes rangú, ha  $X \neq 0$ ,  $E \neq 0$  és  $S_{in} \notin \{0, k_1 X + S + \frac{k_1}{k_3} E\}$ . Így a 1. tétel szerint a rendszer erősen elérhető, ha  $X \neq 0$ ,  $E \neq 0$  és  $S_{in} \notin \{0, k_1 X + S + \frac{k_1}{k_3} E\}$ .

### 3.2. Reverzibilis reakció

Tekintsük a következő batch reaktorban lejátszódó nem izoterm reverzibilis reakciót,



Jelölje  $a, b, c, d$  az egyes vegyületek koncentrációit. A folyamathoz tartozó sztöchiometriai mátrix

$$\gamma = \begin{pmatrix} -1 & 1 \\ -1 & 1 \\ 1 & -1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix}. \quad (25)$$



A rendszer bemenetének a hőmérséklet változtatását tekintjük. Ekkor a folyamatot leíró differenciálegyenlet rendszer

$$\begin{pmatrix} \frac{da}{dt} \\ \frac{db}{dt} \\ \frac{dc}{dt} \\ \frac{dd}{dt} \\ \frac{dT}{dt} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -k_1ab + k_{-1}cd \\ -k_1ab + k_{-1}cd \\ k_1ab - k_{-1}cd \\ k_1ab - k_{-1}cd \\ \frac{k_1}{\beta}ab + \frac{k_2}{\beta}cd \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} u. \quad (26)$$

alakban írható. A folyamathoz tartozó  $f$  és  $g$  vektormezők

$$f = \begin{pmatrix} -k_1ab + k_{-1}cd \\ -k_1ab + k_{-1}cd \\ k_1ab - k_{-1}cd \\ k_1ab - k_{-1}cd \\ \frac{k_1}{\beta}ab + \frac{k_2}{\beta}cd \end{pmatrix}, \quad g = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (27)$$

Nem izoterm, batch reaktorban lejátszódó kémiai reakciók esetében a lineárisan független egyenletek száma  $n = \text{rang}(\gamma) + 1$ . Könnyen látható, hogy a  $\gamma$  mátrix rangja 1, így  $n = 2$ .

A 1. tétel szerint ekkor a rendszer erősen elérhető akkor és csak akkor, ha  $\dim\Delta_c = 2$ .

Tekintsük az  $[f, g]$  Lie-zárójelből és a  $g$  vektormezőből képezhető  $\Theta$  mátrixot,

$$\Theta = ([f, g], g). \quad (28)$$

A  $\Theta$  mátrix teljes rangú, ha  $a \neq 0$  és  $b \neq 0$ , vagy  $c \neq 0$  és  $d \neq 0$ , azaz a rendszer erősen elérhető, ha vagy a reaktáns, vagy a termék oldalon nem 0 az anyagfajták koncentrációja.

## Hivatkozások

- [1] G. Bastin and D. Dochain, *On-line Estimation and Adaptive Control of Bioreactors*. Elsevier, Amsterdam, 1990.
- [2] P. Érdi and J. Tóth, *Mathematical models of chemical reactions. Theory and applications of deterministic and stochastic models*. Princeton University Press, 1989.

- [3] G. Bastin and J. Lévine, „On State Accessibility in Reaction Systems,” *IEEE Transactions on automatic control*,, vol. 38, pp. 733–742, 1993.
- [4] D. Dochain and L.Chen, „Local observability and controllability of stirred tank reactors,” *Journal of Process Control*,, vol. 2, pp. 139–144, 1992.
- [5] A. Rapaport and D. Dochain, „A robust asymptotic observer for systems that converge to unobservable states. a batch reactor case study,” *IEEE Transactions on automatic control*,, vol. 65, pp. 2693–2699, 2019.
- [6] A. Isidori, *Nonlinear Control Systems*. Springer Verlag, London, 1995.
- [7] D. A. Drexler, E. Virágh, and J. Tóth, „Controllability and reachability of reactions with temperature and inflow control,” *Fuel*, vol. 211, pp. 906–911, 2017.