

БЪЛГАРСКА АКАДЕМИЯ НА НАУКИТЕ

ИНСТИТУТ ПО ИНЖЕНЕРНА ХИМИЯ

инж. ПЕТЯ ГЕОРГИЕВА ПОПОВА

**ОПРЕДЕЛЯНЕ НА ПАРАМЕТРИ В МОДЕЛИ
НА ИНЖЕНЕРНО-ХИМИЧНИ ПРОЦЕСИ**

АВТОРЕФЕРАТ

на дисертационен труд за получаване на образователна и научна степен

“Доктор”

Научна специалност: 02.10.09

„Процеси и апарати в химичната и биохимичната технология”

Научен ръководител: проф. д-н. Христо Бояджиев

София, 2011 г.

Дисертационният труд е написан на 106 печатни страници и съдържа 20 фигури и 5 таблици.
Цитирани са 105 литературни източника.

Дисертационният труд е обсъден и предложен за защита от Колоквиума по инженерна химия при ИИХ-БАН на заседание, състояло се на 10. 12. 2010 г.

Благодаря на проф. д-н. Христо Бояджиев за напътствията и оказаната консултантска и методическа помощ при реализиране на изследванията, свързани с работата ми, и за формирането ми като изследовател.

Благодаря на семейството и приятелите си за търпението, подкрепата и разбирането.

Съдържание:

Използвани означения.....	4
Увод.....	5
1. Литературен обзор и изводи.....	6
2. Цел и задачи на дисертационния труд.....	7
3. Специална част.....	7
3.1. Регуляризационен метод за параметрична идентификация	7
3.2. Йерархичен подход за идентификация на параметрите	14
3.3. Параметрична идентификация при моделирането на процеса на ферментация на глюкоза в ерлифтен биореактор.....	18
3.4. Моделиране кинетиката на нарастване на червени микроводорасли в ерлифтен фотобиореактор.....	26
3.4.1. Математичен модел.....	29
3.4.2. Определяне на параметрите в модела.....	31
3.4.3. Анализирание на резултатите.....	34
4. Изводи и приноси.....	38
Цитирана литература в автореферата.....	39
Списък на публикациите и докладите с участието на докторанта.....	43

Използвани означения

Величини

- c_G концентрация на глюкозата [$kmol\ G/m^3$]
- c_{Ga} концентрация на глюконовата киселина [$kmol\ Ga/m^3$]
- c_{O_2} концентрация на разтворения кислород [$kmol\ O_2/m^3$]
- $c_{O_2}^*$ равновесна концентрация на разтворения кислород [$kmol/m^3$]
- c_X концентрация на биомасата [kg/m^3]
- D коефициент на дифузия [m^2/s]
- $k_L a$ обменен коефициент на масопренасяне [h^{-1}]
- k_{O_2} коефициент, отразяващ кислородната лимитация [$kmol\ O_2/m^3$]
- k коефициент на масопренасяне [h^{-1}]
- k_0 коефициент, описващ фазата на ненарастване на биомасата [h^{-1}]
- k_1 коефициент, отразяващ получаването на продукта в уравнение (3.3.12) и свързан с нарастването на биомасата [$kmol\ Ga/kg\ X$]
- k_1 коефициент, отразяващ лимитацията на CO_2 в уравнение (3.4.12) [kg/m^3]
- k_2 коефициент, отразяващ получаването на продукта в уравнение (3.3.12) и свързан с ненарастването на биомасата [$kmol\ Ga/kg\ X.h$]
- k_3 коефициент, свързан с растежа на биомасата в уравнение (3.3.12), консумацията на субстрат за растежа на биомасата [$kmol\ G/kg\ X$]
- k_4 коефициент, свързан с растежа на биомасата в уравнение (3.3.12), консумацията на субстрат за растежа на биомасата на час [$kmol\ G/kg\ X.h$]
- k_5 параметър в уравнение (3.3.12) свързан с консумацията на кислород за растежа на биомасата [$kmol\ O_2/kg\ X$]
- k_6 параметър в уравнение (3.3.12) свързан с консумацията на кислород за растежа на биомасата на час [$kmol\ O_2/kg\ X.h$]
- q локална скорост на масопренасяне [kg/m^3h]
- t време [h]
- W обемна скорост на масопренасяне [kg/m^3h]

Гръцки символи

- α_i броя на параметрите в моделните уравнения
- χ константа на Хенри
- μ специфична скорост на растеж на биомасата [h^{-1}]
- μ_{max} максимална специфична скорост на растеж на биомасата [h^{-1}]
- ρ плътност [kg/m^3]

УВОД

Моделирането и симулирането представляват метод за количествено описание на процесите и системите в инженерната химия и химичната технология с цел решаването както на научни, така и на инженерни проблеми.

Моделирането представлява създаването на математическия модел посредством определяне на структурата на математическото описание, определяне стойностите на параметрите на математическото описание на базата на физичен експеримент и проверка на значимостта на параметрите и адекватността на моделите.

Симулирането е количествено описание посредством съставянето на алгоритъм и програма за решаване на уравненията на модела и изчислителен експеримент.

Структурата на математическото описание на инженерно-химичните процеси се изгражда на базата на знанията за техния механизъм и моделите на елементарните процеси (хидродинамични, дифузионни, топлинни, химични, биохимични и др.), които участват в механизма. Математичните структури съдържат параметри, които в повечето случаи се определят на базата на експериментални данни посредством решаване на параметрични идентификационни задачи.

Инженерната химия използва моделирането и симулирането като основен метод при изследването на процесите, базирайки се на постиженията в химията, физиката и математиката. Основна цел на инженерно-химичните изследвания е получаване на количествено описание на механизма и кинетиката на процесите в промишлените апарати за целите на оптималното проектиране, управление и реконструкция на химичните производства.

Проблемите при моделирането на процесите и системите в инженерната химия са свързани преди всичко с идентификацията на моделните параметри. Трудностите, които възникват при решаването на редица практически задачи произтичат най-често от некоректността на параметричната идентификационна задача и многоекстремалността на целевата функция, поради което е необходимо прилагането на специални методи и подходи.

В настоящия дисертационен труд са представени именно такива подходи за параметрична идентификация. За решаването на некоректни обратни задачи е предложен регуляризационен метод. В случаите на многофункционални модели е разработен йерархичен подход, с използване на полиномни апроксимации на предоставени експериментални данни, който е използван при моделиране на процеса на биотрансформация на глюкоза до глюконова киселина и процеса на нарастване на червени мицроводорасли в ерлифтен фотобиореактор.

1. Литературен обзор и изводи

В литературния обзор е разгледано моделирането на инженерно-химичните процеси и по-специално моделирането на елементарните процеси в инженерната химия.

Един от основните проблеми при моделирането на процесите и системите в инженерната химия е свързан с идентификацията на параметрите. Проблемите, които възникват произтичат най-често от некоректността на параметричната идентификационна задача и многоекстремалността на функцията на най-малките квадрати, поради което се налага да се прилагат различни методи за нейното решаване, свързани с математичната структура на модела [1].

Една от най-съществените трудности при оптимизационните задачи в инженерната химия е изборът на метод за тяхното решаване. Тази трудност идва главно от това, че няма универсален алгоритъм за решаване на всички оптимизационни задачи, възникващи в практиката.

Въз основа на направените проучвания се стигна до следните изводи:

- Некоректността на параметричната идентификационна задача следва от чувствителността на решението по отношение на експерименталните грешки, свързани с определянето на зависимата променлива, т.е. малки грешки в експерименталните стойности при определянето на зависимата променлива водят до големи грешки в изчислените стойности на параметрите. За решаването на некоректните обратни задачи се използват методи за регуляризация, най-често вариационен или итеративен подход.
- При некоректните параметрични идентификационни задачи минимизирането на целевата функция най-често не води до решение на моделните уравнения, което налага въвеждане на допълнителни условия.
- Инженерно-химичните процеси много често се описват с голям брой уравнения и параметри. При решаването на практически задачи целевата функция се получава със сложна конфигурация-оврагова, многоекстремална или смесена, което усложнява намирането на екстремума (минимума/максимума) на тази функция. За търсенето на екстремума са необходими много добри начални приближения на стойностите на моделните параметри при стартиране на итеративните процедури. За решаването на оптимизационни задачи от този тип са разработени редица подходи и методи.

2. Цел и задачи на дисертационния труд

Целта на настоящата дисертация е разработване на методи за параметрична идентификация, в случаите на некоректност на обратните задачи и многоекстремалност на целевата функция в многопараметрични инженерно-химични модели.

За реализирането на така поставената цел формулирахме следните задачи:

1. Да се покаже, че *некоректността* на параметричните идентификационни задачи се дължи на малък параметър пред старшата производна в модела, тъй като инженерно-химичните процеси се описват с основните уравнения на хидродинамиката, топло- и масопренасянето, и параметрите (дифузия, вискозитет, топлопроводност) в тези обобщените модели са малки числа. Да се сравни предложеният регуляризационен метод за решаване на такъв тип задачи със симплекс метода *fminsearch*.
2. Създаване на метод за параметрична идентификация в многопараметрични модели посредством полиномни приближения на експериментални данни, което позволява използването на *йерархичен подход* за получаване на началните стойности на параметрите в областта на глобалния минимум. Тестване на този йерархичен подход за параметрична идентификация при многопараметрични модели при моделирането на ферментационен процес.
3. Прилагане на предложения йерархичен метод при моделиране на процеса на фотосинтеза в ерлифтен фотобиореактор и създаване на *кинетичен модел* на този процес на нарастване на червени микроводорасли, в случаите когато не се разполага достатъчно пълна експериментална информация за протичането му.

3. Специална част

3.1. Регуляризационен метод за параметрична идентификация

Много често параметричните идентификационни задачи в инженерната химия са некоректни, като некоректността се дължи на малките стойности на параметрите (коэффициенти на дифузия, вискозитет, топлопроводност) пред старшата производна в модела, т.е. на чувствителността на решението на задачата по отношение на грешките в експерименталните данни [2].

За решаването на обратни задачи от този вид се прилага *методът на регуляризация* [3, 4].

Методът на регуляризация се свежда до намиране на регуляризиращи оператори и определяне на регуляризиращ параметър.

Определянето на регуляризиращите оператори може да се направи посредством итеративен подход.

Итеративната регуляризация представлява построяване на регуляризиращи алгоритми на базата на различни итеративни методи, като параметърът на регуляризацията представлява номера на итерацията [3, 5, 6].

Много итеративни методи за търсене на минимум на функция, в това число и градиентни, са устойчиви по отношение на грешки в изходните данни, но след известен брой итерации тези грешки могат да се увеличават поради натрупване. За целта се налага спиране на итеративните процедури, в резултат на което се получава устойчиво приближение.

Разглежда се модела:

$$y = f(x, b), \quad (3.1.1)$$

където $x = (x_1, \dots, x_m)$ е вектор от независими променливи, а $b = (b_1, \dots, b_j)$ -вектор от параметри.

Параметрите в модела се определят посредством N експериментални значения на зависимите променливи

$$\hat{y} = (\hat{y}_1, \dots, \hat{y}_N). \quad (3.1.2)$$

Това изисква да се въведе функцията на най-малките квадрати:

$$Q(b) = \sum_{n=1}^N (y_n - \hat{y}_n)^2, \quad (3.1.3)$$

където $y_n = f(x_n, b)$ са значенията на зависимите променливи на модела (3.1.1) за $n = 1, \dots, N$, а $x_n = (x_{1n}, \dots, x_{mn})$ са стойностите на независимите променливи за N различни експериментални условия.

Параметрите на модела могат да се определят от условието за минимум на $Q(b)$ в зависимост от параметрите $b = (b_1, \dots, b_j)$.

Итеративната процедура започва с начални приближения за стойностите на параметрите $b^0 = (b_1^0, \dots, b_j^0)$.

На всяка следваща итерация стойностите на тези параметри $b_i = (b_{1i}, \dots, b_{ji})$ (i -номер на итерациите) се определят от условието наложено от движението по посока на антиградиента на $Q(b)$:

$$b_{ji} = b_{j(i-1)} - \beta_{i-1} R_{j(i-1)}, j = 1, \dots, J,$$

$$R_{j(i-1)} = \frac{\left(\frac{\partial Q}{\partial b_j} \right)_{(i-1)}}{\sqrt{\sum_{j=1}^J \left(\frac{\partial Q}{\partial b_j} \right)_{(i-1)}^2}}, j = 1, \dots, J \quad (3.1.4)$$

където β_i е стъпката на итеративната процедура.

$$\left(\frac{\partial Q}{\partial b_j} \right)_{(i-1)} = 2 \sum_{n=1}^N [f(x_n, b_{(i-1)}) - \hat{y}_n] \left[\frac{\partial f(x_n, b)}{\partial b_j} \right]_{(i-1)}, j = 1, \dots, J. \quad (3.1.5)$$

Сходимостта на итеративните методи за търсене на решение на некоректните обратни задачи зависи от тяхната сходимост при коректната им постановка.

Итеративната процедура е *сходяща*, ако са изпълнени условията:

1. Приближаване към минимума на $Q(b)$:

$$Q(b)_{i-1} - Q(b)_i =$$

$$= \sum_{n=1}^N \beta_{(i-1)} \left\{ \left[2f(x_n, b_{(i-1)}) - 2\hat{y}_n - \beta_{(i-1)} \sum_{j=1}^J \left(R_j \frac{\partial f}{\partial b_j} \right)_{(i-1)} \right] \sum_{j=1}^J \left(R_j \frac{\partial f}{\partial b_j} \right)_{(i-1)} \right\} \geq 0 \quad (3.1.6)$$

2. Приближаване към точните стойности на параметрите: $b = \bar{b}$:

$$(b_{j(i-1)} - \bar{b}_j)^2 - (b_{ji} - \bar{b}_j)^2 = \beta_{(i-1)} [2(b_{j(i-1)} - \bar{b}_j) - \beta_{(i-1)} R_{j(i-1)}] R_{j(i-1)} \geq 0, j = 1, \dots, J. \quad (3.1.7)$$

Точните стойности на параметрите в модела не са известни, поради което може да се заменят с желаната точност на тяхното определяне:

$$2|b_{j(i-1)} - \bar{b}_j| \geq \beta_{i-1} |R_{j(i-1)}|, j = 1, \dots, J.$$

$$|b_{j(i-1)} - \bar{b}_j| = \Delta_{j(i-1)}^0 = \Delta_j^0 |b_{j(i-1)}|, \Delta_j^0 = \gamma \frac{b_{j1} - b_{j0}}{b_{j1}}, \quad (3.1.8)$$

като γ се подбира в зависимост от желаната точност на итеративната процедура и играе ролята на регуляризиращ параметър.

От уравнение (3.1.4) се получава изрази:

$$\beta_i |R_{j(i-1)}| = |b_{j(i-1)} - b_{ji}|. \quad (3.1.9)$$

Следователно второто условие за сходимост на итеративната процедура може да се изрази с уравнението:

$$2\Delta_{j(i-1)}^0 \geq |b_{j(i-1)} - b_{ji}|, \quad j = 1, \dots, J. \quad (3.1.10)$$

Показател за отдалечаване от истинската стойност на параметъра е:

$$|b_{j(i-1)} - b_{ji}| > 2\Delta_{j(i-1)}^0. \quad (3.1.11)$$

Стъпката на итеративната процедура се определя на всяка итерация.

1. В случаите, когато: $Q_i - Q_{i-1} < 0, Q_{i-1} - Q_{i-2} < 0$, стъпката на итеративната процедура се увеличава се двойно: $\beta_{i+1} = 2\beta_i$;
2. Когато: $Q_i - Q_{i-1} < 0, Q_{i-1} - Q_{i-2} \geq 0$, стъпката на итеративната процедура се запазва: $\beta_{i+1} = \beta_i$;
3. В случаите на неуспешна итерация: $Q_i - Q_{i-1} \geq 0$, поради отдалечаване от истинската стойност на параметрите, стъпката на итеративната процедура се намалява: $\beta_{i+1} = \frac{1}{2}\beta_i$.

Критерий за спиране на итерациите.

Итеративната процедура спира, ако след неуспешен преход към минимума на функцията на най-малките квадрати, разликата между две последни итерации е по-малка от зададената точност:

$$|b_{j(i-1)} - b_{ji}| < \Delta_{j(i-1)}. \quad (3.1.12)$$

Единственост на решението.

За единствеността на решението е необходимо β да отговаря на допълнително условие, така че да се гарантира сходимостта на итеративната процедура, т.е. едновременно да са изпълнени условията:

$$\beta_{i-1} \geq \frac{2|b_{j(i-1)} - \bar{b}_j|}{R_{j(i-1)}} = \frac{2\Delta_{j(i-1)}}{R_{j(i-1)}}, \quad (3.1.13)$$

където $\Delta_{j(i-1)}$ е точността, с която е възможно определянето на b_j .

Итеративната регуляризация представлява построяване на регуляризиращи алгоритми на базата на различни итеративни методи, като параметъра на регуляризацията представлява номера на итерацията [3, 4, 5].

Сравнени са метода на регуляризация и симплекс метода *fminsearch*, използвайки Matlab R2007b [7], като за целта се разглежда двупараметричния модел:

$$\begin{aligned} \frac{1}{b_2} y'' + y' &= 0, \\ y(0) &= 1 - b_1, \\ y'(0) &= b_1 b_2, \end{aligned} \quad (3.1.14)$$

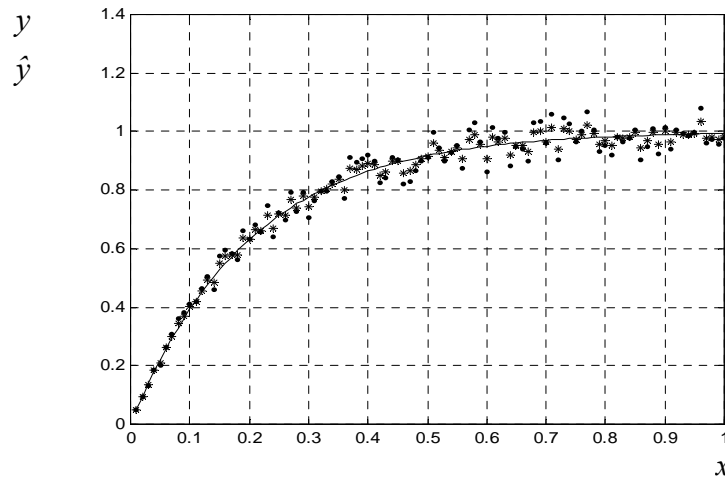
където $\bar{b}_1 = 1$, $\bar{b}_2 = 5$. и $\bar{b}_2 = 5$ са точните стойности на параметрите.

Параметричната идентификационна задача се решава на базата на данни, получени с помощта на генератор за случайни числа.

$$\hat{y}_n^{(1)} = (0.9 + 0.2A_n)y_n, \quad (3.1.15)$$

където A_n са случайни числа в интервала $\{0,1\}$. Стойностите на функцията y_n са получени от модела (3.1.14) за $x = 0.01n$ ($n = 0, \dots, 99$). Максималната относителна грешка на тези данни $\Delta\hat{y}$ е $\pm 10\%$.

Стойностите на y и \hat{y} са показани на фиг. 1. На тази фигура са представени решенията на моделното уравнение при различни значения на независимите променливи.



Фиг. 1. Сравнение на данните, получени от модела $\bar{y} (b_1 = 1, b_2 = 5)$ и посредством генератора за случайни числа \hat{y} (с максимална относителна грешка $\pm 10\%$)

Параметрите в модела (3.1.14) се определят на базата на N -броя стойности на целевата функция ($n = 1, \dots, N$), посредством минимизиране на функцията Q :

$$Q(b_1, b_2) = \sum_{n=1}^N (y_n - \hat{y}_n)^2. \quad (3.1.3)$$

Моделното уравнение се решава при различни интервали на независимата променлива. В първата област на изменение $0 \leq x \leq 0.3$ обратната задача е коректна, при следващата област $0.31 \leq x \leq 0.65$ -задачата е некоректна, а в третия интервал на изменение $0.66 \leq x \leq 1$ -задачата е съществено некоректна.

Параметричната идентификационна задача е решена посредством итеративния метод [8-10] (b_1^*, b_2^*) и симплекс метода $fminsearch (b_1^{**}, b_2^{**})$.

Ефективността на всеки итеративен метод за търсене на екстремум на функции зависи от началните приближения на стойностите на моделните параметри, поради тази причина двупараметричният модел (3.1.14) се решава с различни начални стойности на коефициентите.

Моделното уравнение се анализира за различни интервали на изменение на независимата променлива при различни начални приближения на стойностите на единия параметър (Табл. 1) и при различен набор от данни (\hat{y}_n) , получени посредством генератора за случайни числа (Табл. 2), за да се направи сравнение на получените от двата итеративни метода резултати.

Резултатите, представени в Табл. 1 показват, че в първата област на изменение на независимата променлива (коректна обратна задача) няма разлики в получени чрез двата метода на идентификация стойности на коефициентите. При решаването на задачата в другите два интервала на изменение на независимата променлива (области на некоректност и съществена некоректност) се наблюдават съществени разлики в стойностите на параметрите, особено в последната област, където изчислените посредством симплекс метода стойности на коефициентите не са решения на моделното уравнение.

Таблица 1. Стойности на параметрите в моделното уравнение (3.1.14) при различни начални приближения на коефициента b_1 и различни области на изменение на независимата променлива

$b_2^{(0)} = 6$					
Интервали на независимата променлива	$b_1^{(0)}$	Метод на регуляризация		Симплекс метод <i>fminsearch</i>	
		b_1^*	b_2^*	b_1^{**}	b_2^{**}
$0 \leq x \leq 0.3$	0.7	0.9814	4.8926	0.9847	4.8171
	1.1	0.9886	4.9609	0.9847	4.8171
	1.5	0.9859	4.9269	0.9847	4.8172
$0.31 \leq x \leq 0.65$	0.7	0.8100	6.4941	1.3466	5.8693
	1.1	1.3314	5.8549	1.3466	5.8693
	1.5	1.4206	6.0224	1.3466	5.8693
$0.66 \leq x \leq 1$	0.7	3.9725	7.1515	50.7260	10.7409
	1.1	6.0503	7.7681	50.7260	10.7409
	1.5	3.9921	7.1355	50.7262	10.7409

Параметричната идентификационна задача е решена и с различен набор от данни, получени с генератора за случайни числа (Табл. 2), и от анализа на резултатите се доказва, че некоректността на обратните задачи се дължи на чувствителността на решението по отношение на грешките в тези данни.

Таблица 2. Стойности на параметрите, изчислени с различен набор от данни (\hat{y}_n),
получени посредством генератора за случайни числа.

$b_1^{(0)} = 1.1 \quad b_2^{(0)} = 6$					
Интервали на независимата променлива	\hat{y}_n	Метод на регуляризация		Симплекс метод <i>fminsearch</i>	
		b_1^*	b_2^*	b_1^{**}	b_2^{**}
$0 \leq x \leq 0.3$	1	0.9886	4.9609	0.9847	4.8171
	2	1.0081	5.1644	0.9847	4.8171
	3	1.0032	5.2764	0.9847	4.8171
$0.31 \leq x \leq 0.65$	1	1.3314	5.8549	1.3466	5.8693
	2	1.2662	5.5033	1.1661	5.2752
	3	1.3800	5.5837	1.3319	5.4801
$0.66 \leq x \leq 1$	1	6.0503	7.7681	50.7260	10.7409
	2	4.1249	6.3384	31.5533	9.1915
	3	1.8127	5.4030	5.0522	6.8221

От получените резултати може да се направи извода, че в случаите когато обратната задача е некоректна или съществено некоректна не могат да се прилагат директните методи за идентификация, а е необходимо да се използват различни подходи и да се въвеждат допълнителни условия за определяне на коефициентите в модела.

3.2. Йерархичен подход за идентификация на параметрите

Много често моделите на инженерно-химичните процеси съдържат голям брой уравнения и параметри.

В тези случаи определянето на параметрите посредством минимизиране на целевата функция (функцията на най-малките квадрати) е сложно, поради многоекстремалността на тази функция.

За решаването на тази задача е необходимо да се намерят много добри начални приближения за стойностите на параметрите в модела. Използването на полиномни апроксимации на експерименталните данни позволява прилагането на йерархичен подход за

получаване на началните стойности на параметрите при стартиране на итеративната процедура [11].

Методът на параметрична идентификация в многопараметрични модели е използван при моделирането на ферментационни системи. Стойностите на параметрите са получени на базата на реални експериментални данни за ферментационен процес [12]. Получените резултати показват намаляване на грешката на модела при всяко следващо йерархично ниво и добро съответствие с експерименталните данни при последното ниво [13, 14].

Нека разгледаме многопараметричния модел:

$$\frac{dc_i}{dt} = F_i(c_1, \dots, c_M; b_{i1}, \dots, b_{i\alpha_i}), \quad c_i(0) = c_{(0)i}, \quad i = 1, \dots, M, \quad (3.2.1)$$

За решаването на идентификационната задача се използват експериментални данни за зависимите променливи:

$$c_i^{(e)} = c_i^{(e)}(t_n), \quad n = 1, \dots, N, \quad (3.2.2)$$

където N е броя на експерименталните данни.

Функциите на най-малките квадрати за отделните уравнения са:

$$Q_i(b_{i1}, \dots, b_{i\alpha_i}) = \sum_{n=1}^N [c_i(t_n) - c_i^{(e)}(t_n)]^2, \quad i = 1, \dots, M, \quad (3.2.3)$$

където $c_i(t_n)$, $i = 1, \dots, M$ са получените стойности на концентрациите след решаването на уравнение (3.2.1).

Функцията на най-малките квадрати за уравнение (3.2.1) е:

$$Q = \sum_{i=1}^M Q_i. \quad (3.2.4)$$

Общият брой на параметрите в уравнение (3.2.4):

$$I = \sum_{i=1}^M \alpha_i \quad (3.2.5)$$

е много голям и в много случаи не е възможно да се намери минимума на функцията Q , тъй като тя е многоекстремална.

За определянето на зоната на глобалния минимум на функцията на най-малките квадрати са необходими много добри начални приближения за стойностите на параметрите в модела, т.е. стартирането на минимизационната процедура е необходимо да бъде в тази зона.

Експерименталните данни за изменението на концентрацията с времето могат да се представят посредством полиномни приближения.

$$c_i^{(e)}(t_n) \rightarrow P_i(t), \quad n = 1, \dots, N, \quad i = 1, \dots, M, \quad (3.2.6)$$

където $P_i(t)$ са полиноми от 5^{та} и 6^{та} степен.

Разглеждаме първото уравнение от (3.2.1), където всички функции, в това число и първата, са заместени с полиномните апроксимации на експерименталните данни.

$$c_i(t) \equiv P_i(t), \quad 2 \leq i \leq M, \quad (3.2.7)$$

т.е.

$$\frac{dc_1}{dt} = F_1(c_1, P_2, \dots, P_M; b_{11}, \dots, b_{1\alpha_1}), \quad c_1(0) = c_{(0)1}. \quad (3.2.8)$$

Минимизацията на функцията:

$$Q_1(\tilde{b}_{11}, \dots, \tilde{b}_{1\alpha_1}) = \sum_{n=1}^N [c_1(t_n) - P_1(t_n)]^2, \quad (3.2.9)$$

където $c_1(t_n)$ е решението на уравнение (3.2.8), позволява да се изчислят стойностите на параметрите $(\tilde{b}_{11}, \dots, \tilde{b}_{1\alpha_1})$ в първото уравнение на модела (3.2.1). Получените грешки при параметричната идентификация в този случай са резултат единствено на грешките от експерименталните данни и грешките от полиномните приближения.

Тази процедура е възможно да се повтори за всички уравнения на модела (3.2.1) (стъпка по стъпка). Получените стойности на параметрите $\tilde{b}_{ij}; i = 1, \dots, M; j = 1, \dots, \alpha_i$ могат да се използват като нулеви приближения в параметричната идентификационна задача и те се явяват нулево йерархично ниво в идентификационната процедура.

Много често точността на нулевите приближения на стойностите на параметрите не са достатъчни за минимизацията на Q в уравнение (3.2.4), защото стойностите на параметрите в един модел не отчитат грешките в други модели.

Следващата стъпка е изчисляване на параметрите във второто уравнение от модела (3.2.1).

За тази цел се решават първите две уравнения:

$$\frac{dc_1}{dt} = F_1(c_1, c_2, P_3, \dots, P_M; \tilde{b}_{11}, \dots, \tilde{b}_{1\alpha_1}), \quad c_1(0) = c_{(0)1};$$

$$\frac{dc_2}{dt} = F_2(c_1, c_2, P_3, \dots, P_M; b_{21}, \dots, b_{2\alpha_2}), \quad c_2(0) = c_{(0)2} \quad (3.2.10)$$

и след минимизация на функцията Q_2 се получават стойностите на параметрите във второто уравнение $(\bar{b}_{21}, \dots, \bar{b}_{2\alpha_2})$. $Q_2(\bar{b}_{21}, \dots, \bar{b}_{2\alpha_2}) \rightarrow \min$

Следващата стъпка е решаването на трите уравнения от (3.2.1):

$$\begin{aligned} \frac{dc_1}{dt} &= F_1(c_1, c_2, c_3, P_4, \dots, P_M; \tilde{b}_{11}, \dots, \tilde{b}_{1\alpha_1}), \quad c_1(0) = c_{(0)1}; \\ \frac{dc_2}{dt} &= F_2(c_1, c_2, c_3, P_4, \dots, P_M; \bar{b}_{21}, \dots, \bar{b}_{2\alpha_2}), \quad c_2(0) = c_{(0)2}; \\ \frac{dc_3}{dt} &= F_3(c_1, c_2, c_3, P_4, \dots, P_M; b_{31}, \dots, b_{3\alpha_3}), \quad c_3(0) = c_{(0)3} \end{aligned} \quad (3.2.11)$$

и след минимизацията на функцията Q_3 се получават стойностите на коефициентите $(\bar{b}_{31}, \dots, \bar{b}_{3\alpha_3})$.

Последната стъпка е решаването на i уравнения

$$\begin{aligned} \frac{dc_1}{dt} &= F_1(c_1, \dots, c_i; \tilde{b}_{11}, \dots, \tilde{b}_{1\alpha_1}), \quad c_1(0) = c_{(0)1}, \\ \frac{dc_i}{dt} &= F_i(c_1, \dots, c_i; b_{i1}, \dots, b_{i\alpha_i}), \quad c_i(0) = c_{(0)i}, \quad i = 2, \dots, M, \end{aligned} \quad (3.2.12)$$

и получаване на $(\bar{b}_{i1}, \dots, \bar{b}_{i\alpha_i})$ след минимизацията на Q_i .

Последното йерархично ниво е решаването на уравненията (3.2.1) и минимизиране на функцията Q , използвайки вече изчислените стойности на коефициентите \bar{b}_{ij} ($i = 1, \dots, M; j = 1, \dots, \alpha_i$) като начални приближения в минимизационната процедура.

Използването на полиномни апроксимации на експерименталните данни позволява прилагането на този йерархичен подход за получаване на началните стойности на параметрите при стартиране на итеративната процедура.

Този метод на параметрична идентификация в многопараметрични модели е използван за моделиране на процеса на окисление на глюкоза до глюконова киселина в ерлифтен биореактор, като стойностите на моделните параметри са получени на базата на реални експериментални данни за този ферментационен процес.

3.3. Параметрична идентификация при моделирането на процеса на ферментация на глюкоза в ерлифтен биореактор.

Разгледан е процесът на микробно окисление на глюкоза под действие на бактериите *Gluconobacter oxydans*. При този процес продуцирането е пряко свързано с растежа на биомасата. Тази причина, както и високия добив, прави тази реакция твърде удобна като моделна при решаването на някои от поставените в настоящата дисертационна работа задачи. Освен това тази ферментация има и практическо значение, поради приложението на солите на глюконовата киселина в медицината под формата на калциев глюконат като сърдечен стимулатор и на железен глюконат срещу анемия [15], като миещо средство за отстраняване на налепи от калциеви и железни съединения [16] и др.

Най-често използваните щамове за окислението на глюкоза до глюконова киселина са *Aspergillus niger* [17-22] и щамове от рода *Gluconobacter* (*G. oxydans*, *G. suboxydans*, *G. melanogenus* и др.) [23].

Преобладава мнението, че реакцията не се лимитира от концентрацията на глюкозата, а от тази на кислорода, като съществена част от него се изразходва за растеж на биомасата [24-26]. Съществуват опити за пулсиращо подаване на кислород след периоди на деаерация с азот [27], както и аерация с въздух, обогатен с кислород [26, 27]. Оказва се, че само до известна степен обогатяването на въздуха с кислород допринася за ускоряване на окислението, а при съдържание във въздуха над 60 % окислението е силно инхибирано, въпреки че растежът на клетките продължава [25]. Според Traeger et al. (1987) [26] специфичната скорост на растеж и скоростта на продуциране намаляват линейно с покачване на парциалното налягане на кислорода във въздуха.

След като определящ фактор за протичането на това окисление е скоростта на подаване и консумация на кислорода, от основно значение се оказват скоростите на аерация и на масопренасяне. Oosterhuis et al. (1985) [27] изследват значението на концентрацията на разтворения кислород върху развитието на щама и скоростта на окисление на глюкозата. Като се има предвид, че равновесната концентрация на кислорода в дестилирана вода при налягане 1 atm и 32°C е около $7,66 \cdot 10^{-3} \text{ kg/m}^3$ [28] може да се заключи, че само стойности на $k_L a$ над 110 h^{-1} могат да осигурят достатъчно кислород, за да се избегне кислородната лимитация. Oosterhuis et al. (1985) [26] дават и свои опитни данни за скоростта на продуциране, скоростта на потребление на кислорода и специфичната дихателна активност на микроорганизмите. Оказва се, че всички те слабо се влияят от концентрацията на

разтворения кислород в интервала 3÷55% спрямо равновесието. Под тази стойност, обаче, настъпва режим на кислородна лимитация и линеен растеж на биомасата.

С малки изключения [29, 30] изследванията върху окислението на глюкоза до глюконова киселина са извършени при начални концентрации (до 50 kg/m³), които нямат практическо значение. От гледна точка на практическото приложение на този ферментационен процес е интересно да се изучи кинетиката му при високи начални концентрации на субстрата.

Биотрансформацията на глюкоза до глюконова киселина е много бавен процес [12, 24], като биомасата, глюкозата и продуктите на реакцията циркулират в ерлифтен апарат, където течността се насища с кислорода във вътрешната тръба на апарата. Експериментално е измерено изменението на концентрацията на реагентите с времето. При тези условия ерлифтния биореактор представлява апарат с идеално смесване, т.е. концентрацията на всички вещества в течната фаза са постоянни в обема на апарата и се изменят само с времето. Масопренасянето на кислорода от газовата към течната фаза става при постоянна концентрация на кислорода в течността по височина на колоната. Концентрацията на кислорода в газовата фаза е практически постоянна.

Растежът на биомасата се изразява с уравнението:

$$\frac{dc_X}{dt} = \mu c_X, \quad (3.3.1)$$

където специфична скорост на растеж се описва с кинетичното уравнение на Моно:

$$\mu = \mu_{max} \frac{c_G}{k_G + c_G} \frac{c_{O_2}}{k_{O_2} + c_{O_2}}. \quad (3.3.2)$$

Получаването на глюконовата киселина се описва с кинетичното уравнение на Luedeking-Piret [31].

$$\frac{dc_{Ga}}{dt} = k_1 \frac{dc_X}{dt} + k_2 c_X, \quad (3.3.3)$$

За протичането на тази биохимична реакция освен глюкозата като втори субстрат се приема и кислорода от въздуха. Уравненията за скоростта на консумация на субстратите изразяват материалния баланс на глюкозата и кислорода:

$$\frac{dc_G}{dt} = -k_3 \frac{dc_X}{dt} - \frac{dc_{Ga}}{dt} - k_4 c_X \quad (3.3.4)$$

$$\frac{dc_{O_2}}{dt} = k_L a (c_{O_2}^* - c_{O_2}) - k_5 \frac{dc_X}{dt} - \frac{1}{2} \frac{dc_{Ga}}{dt} - k_6 c_X. \quad (3.3.5)$$

Началните условия на процеса на биотрансформация са:

$$t = 0, \quad c_X = c_X^{(0)}, \quad c_{Ga} = c_{Ga}^{(0)}, \quad c_G = c_G^{(0)}, \quad c_{O_2} = c_{O_2}^{(0)}. \quad (3.3.6)$$

Параметричната идентификационна задача (3.3.1-3.3.5) ще бъде анализирана в безизмерен вид, като за мащаби се използват максималните стойности на концентрациите на реагентите и продукта на реакцията (вж. Таблица 3):

$$C_X = \frac{c_X}{c_X^{\max}}, \quad C_{Ga} = \frac{c_{Ga}}{c_G^{\max}}, \quad C_G = \frac{c_G}{c_G^{\max}}, \quad C_{O_2} = \frac{c_{O_2}}{c_{O_2}^*}. \quad (3.3.7)$$

Уравненията на предложения модел, след въвеждане на концентрациите в безизмерен вид, имат вида:

$$\frac{dC_X}{dt} = \mu_{\max} \frac{C_G}{K_G + C_G} \frac{C_{O_2}}{K_{O_2} + C_{O_2}} C_X, \quad (3.3.8)$$

$$\frac{dC_{Ga}}{dt} = K_1 \frac{dC_X}{dt} + K_2 C_X, \quad (3.3.9)$$

$$\frac{dC_G}{dt} = -K_3 \frac{dC_X}{dt} - \frac{dC_{Ga}}{dt} - K_4 C_X, \quad (3.3.10)$$

$$\frac{dC_{O_2}}{dt} = k_L a (1 - C_{O_2}) - K_5 \frac{dC_X}{dt} - \frac{c_G^{\max}}{2c_{O_2}^*} \frac{dC_{Ga}}{dt} - K_6 C_X, \quad (3.3.11)$$

където

$$K_G = \frac{k_G}{c_G^{\max}}, \quad K_{O_2} = \frac{k_{O_2}}{c_{O_2}^*}; \quad K_1 = \frac{k_1 c_X^{\max}}{c_G^{\max}}, \quad K_2 = \frac{k_2 c_X^{\max}}{c_G^{\max}}; \\ K_3 = \frac{k_3 c_X^{\max}}{c_G^{\max}}, \quad K_4 = \frac{k_4 c_X^{\max}}{c_G^{\max}}; \quad K_5 = \frac{k_5 c_X^{\max}}{c_{O_2}^*}, \quad K_6 = \frac{k_6 c_X^{\max}}{c_{O_2}^*}. \quad (3.3.12)$$

Началните условия на получените в безизмерен вид уравнения (3.3.8-3.3.11) са:

$$t = 0, \quad C_X = C_X^{(0)}, \quad C_{Ga} = C_{Ga}^{(0)} = 0, \quad C_G = C_G^{(0)}, \quad C_{O_2} = C_{O_2}^{(0)}. \quad (3.3.13)$$

Ферментационният процес съдържа голям брой уравнения и параметри и целевата функция (функцията на най-малките квадрати) е многоекстремална. Поради тази причина са необходими много добри начални приближения на стойностите на параметрите в

уравненията при итеративните процедури за търсене на екстремума. За тази цел коефициентите в модела се определят, използвайки полиномна апроксимация на наличните експериментални данни.

Параметричната идентификационна задача се решава на базата на реални експериментални данни [12].

Наличието на експериментална информация за изменението на концентрациите на реагентите и продукта на реакцията с времето позволява получаването на тяхната полиномна апроксимация $(P_X, P_{Ga}, P_G, P_{O_2})$ и изчисляването на грешките, дължащи се на тази апроксимация $(S_X, S_{Ga}, S_G, S_{O_2})$:

$$P_X(t) = -2.7125 \cdot 10^{-8} t^6 + 2.5023 \cdot 10^{-6} t^5 - 8.7499 \cdot 10^{-5} t^4 + 1.41 \cdot 10^{-3} t^3 - 9.0543 \cdot 10^{-3} t^2 + 3.0894 \cdot 10^{-2} t + 6.9996 \cdot 10^{-2},$$

$$S_X = 0.00164;$$
(3.3.14)

$$P_{Ga}(t) = -7.3643 \cdot 10^{-8} t^5 + 3.5119 \cdot 10^{-6} t^4 - 3.0441 \cdot 10^{-5} t^3 + 2.176 \cdot 10^{-4} t^2 + 1.3591 \cdot 10^{-4} t + 9.9851 \cdot 10^{-5},$$

$$S_{Ga} = 0.00167;$$
(3.3.15)

$$P_G(t) = -3.0467 \cdot 10^{-9} t^6 + 2.4717 \cdot 10^{-7} t^5 - 6.571 \cdot 10^{-6} t^4 + 4.8921 \cdot 10^{-5} t^3 - 3.017 \cdot 10^{-4} t^2 - 5.8582 \cdot 10^{-4} t + 0.9998,$$

$$S_G = 0.00155;$$
(3.3.16)

$$P_{O_2}(t) = -1.7037 \cdot 10^{-8} t^6 + 1.3205 \cdot 10^{-6} t^5 - 4.1355 \cdot 10^{-5} t^4 + 5.8519 \cdot 10^{-4} t^3 - 3.8151 \cdot 10^{-3} t^2 + 3.7716 \cdot 10^{-3} t + 0.9998,$$

$$S_{O_2} = 0.00177.$$
(3.3.17)

Таблица 3 Начални и максимални експериментални стойности

	Начални концентрации	Максимални концентрации
Биомаса	$c_X^{(0)} = 0.2040 \text{ kg} / \text{m}^3$	$c_X^{\max} = 2.9238 \text{ kg} / \text{m}^3$
Глюконова киселина	$c_{Ga}^{(0)} = 0 \text{ kmol} / \text{m}^3$	$c_{Ga}^{\max} = c_G^{\max} = 1.1667 \text{ kmol} / \text{m}^3$
Глюкоза	$c_G^{(0)} = 1.1667 \text{ kmol} / \text{m}^3$	$c_G^{\max} = 1.1667 \text{ kmol} / \text{m}^3$
Кислород	$c_{O_2}^{(0)} = 2.41 \cdot 10^{-4} \text{ kmol} / \text{m}^3$	$c_{O_2}^* = 2.41 \cdot 10^{-4} \text{ kmol} / \text{m}^3$

Нулеви приближения на стойностите на параметрите в модела

Нулевите приближения на стойностите на параметрите в модела могат да се получат, използвайки (3.3.8-3.3.11), като изменението на концентрациите в уравненията се заместят с техните полиномни апроксимации (3.3.14-3.3.17).

За определянето на тези нулеви приближения на стойностите на коефициентите е необходимо да се решат последователно уравненията (3.3.8-3.3.11), описващи процеса на биотрансформация:

$$\frac{dC_X}{dt} = \mu_{\max} \frac{P_G}{K_G + P_G} \frac{P_{O_2}}{K_{O_2} + P_{O_2}} C_X,$$

$$t = 0, \quad C_X = C_X^{(0)}. \quad (3.3.18)$$

$$\frac{dC_{Ga}}{dt} = K_1 \frac{dP_X}{dt} + K_2 P_X,$$

$$t = 0, \quad C_{Ga} = 0; \quad (3.3.19)$$

$$\frac{dC_G}{dt} = -K_3 \frac{dP_X}{dt} - \frac{dC_{Ga}}{dt} - K_4 P_X,$$

$$t = 0, \quad C_G = 1; \quad (3.3.20)$$

$$\frac{dC_{O_2}}{dt} = k_L a (1 - C_{O_2}) - K_5 \frac{dP_X}{dt} - \frac{c_G^{\max}}{2c_{O_2}^*} \frac{dP_{Ga}}{dt} - K_6 P_X,$$

$$t = 0, \quad C_{O_2} = 1; \quad (3.3.21)$$

Стойностите на параметрите в модела са получени посредством минимизиране на функцията на най-малките квадрати:

$$Q_X(\tilde{\mu}_{\max}, \tilde{K}_G, \tilde{K}_{O_2}) = \min \int_0^{t_N} (C_X - P_X)^2 dt, \quad (3.3.22)$$

$$Q_{Ga}(\tilde{K}_1, \tilde{K}_2) = \min \int_0^{t_N} (C_{Ga} - P_{Ga})^2 dt \quad (3.3.23)$$

$$Q_G(\tilde{K}_3, \tilde{K}_4) = \min \int_0^{t_N} (C_G - P_G)^2 dt \quad (3.3.24)$$

$$Q_{O_2}(\tilde{k}_L a, \tilde{K}_5, \tilde{K}_6) = \min \int_0^{t_N} (C_{O_2} - P_{O_2})^2 dt. \quad (3.3.25)$$

Следващият етап в този йерархичен подход за параметрична идентификация е съвместното решаване на уравнения за растежа на биомасата и получаването на глюконовата киселина и определяне на коефициентите във второто уравнение:

$$\frac{dC_X}{dt} = \tilde{\mu}_{\max} \frac{P_G}{\tilde{K}_G + P_G} \frac{P_{O_2}}{\tilde{K}_{O_2} + P_{O_2}} C_X,$$

$$\frac{dC_{Ga}}{dt} = K_1 \frac{dC_X}{dt} + K_2 C_X,$$

$$t = 0, \quad C_X = C_X^{(0)}, \quad C_{Ga} = 0 \quad (3.3.26)$$

$$Q_{Ga}(\bar{K}_1, \bar{K}_2) \rightarrow \min. \quad (3.3.27)$$

С така изчислените стойности на параметрите \bar{K}_1, \bar{K}_2 се определят коефициентите \bar{K}_3, \bar{K}_4 в кинетичното уравнение, описващо консумацията на глюкозата, посредством решаване на системата:

$$\frac{dC_X}{dt} = \tilde{\mu}_{\max} \frac{C_G}{\tilde{K}_G + C_G} \frac{P_{O_2}}{\tilde{K}_{O_2} + P_{O_2}} C_X,$$

$$\frac{dC_{Ga}}{dt} = \bar{K}_1 \frac{dC_X}{dt} + \bar{K}_2 C_X,$$

$$\frac{dC_G}{dt} = -K_3 \frac{dC_X}{dt} - \frac{dC_{Ga}}{dt} - K_4 C_X,$$

$$t = 0, \quad C_X = C_X^{(0)}, \quad C_{Ga} = 0, \quad C_G = 1$$

$$Q_G(\bar{K}_3, \bar{K}_4) \rightarrow \min. \quad (3.3.28)$$

Стойностите на параметрите в уравнението, описващо консумацията на кислорода се получават след решаване на моделните уравнения (3.3.8-3.3.11) и минимизиране на функцията $Q_{O_2}(\bar{k}_L a, \bar{K}_5, \bar{K}_6)$.

$$\frac{dC_X}{dt} = \tilde{\mu}_{\max} \frac{C_G}{\tilde{K}_G + C_G} \frac{C_{O_2}}{\tilde{K}_{O_2} + C_{O_2}} C_X,$$

$$\frac{dC_{Ga}}{dt} = \bar{K}_1 \frac{dC_X}{dt} + \bar{K}_2 C_X,$$

$$\frac{dC_G}{dt} = -\bar{K}_3 \frac{dC_X}{dt} - \frac{dC_{Ga}}{dt} - \bar{K}_4 C_X,$$

$$\frac{dC_{O_2}}{dt} = k_L a (1 - C_{O_2}) - K_5 \frac{dC_X}{dt} - \frac{c_G^{\max}}{2c_{O_2}^*} \frac{dC_{Ga}}{dt} - K_6 C_X,$$

$$t = 0, \quad C_X = C_X^{(0)}, \quad C_{Ga} = 0, \quad C_G = 1, \quad C_{O_2} = 1 \quad (3.3.29)$$

Последната стъпка в този подход за параметрична идентификация е решаване на системата (3.3.29), с вече изчислените стойности на коефициентите $(\bar{K}_1, \bar{K}_2, \bar{K}_3, \bar{K}_4, \bar{k}_L a, \bar{K}_5, \bar{K}_6)$, и определяне на стойностите на параметрите в уравнението, описващо растежа на биомаса $Q_X(\bar{\mu}_{max}, \bar{K}_G, \bar{K}_{O_2}) \rightarrow \min$.

Получените приблизителни стойности на параметрите в модела посредством този йерархичен подход позволяват намирането на точните им стойности. Получените резултати [13, 14] са показани в Табл. 4

$$Q(\mu_{max}, K_G, K_{O_2}, K_1, K_2, K_3, K_4, k_L a, K_5, K_6) = \\ = \sum_{n=1}^N (C_{Xn} - C_{Xn}^{(e)})^2 + \sum_{n=1}^N (C_{Gn} - C_{Gn}^{(e)})^2 + \sum_{n=1}^N (C_{Gan} - C_{Gan}^{(e)})^2 + \sum_{i=1}^N (C_{O_2n} - C_{O_2n}^{(e)})^2, \quad (3.3.30)$$

където N е броят на експерименталните данни.

Таблица 4 Стойности на параметрите в модела

\hat{b}	\tilde{b}	\bar{b}	b
1	2	3	4
$\hat{\mu}_{max} = 2.427 \cdot 10^{-5} h^{-1}$ $\hat{K}_G = 3.108 \cdot 10^{-5}$ $\hat{K}_{O_2} = 3.412 \cdot 10^{-5}$	$\tilde{\mu}_{max} = 0.5843 h^{-1}$ $\tilde{K}_G = 1.505$ $\tilde{K}_{O_2} = 0.9894$	$\bar{\mu}_{max} = 0.5064 h^{-1}$ $\bar{K}_G = 1.541$ $\bar{K}_{O_2} = 0.6308$	$\mu_{max} = 0.4345 h^{-1}$ $K_G = 0.9914$ $K_{O_2} = 0.8053$
$\hat{K}_1 = 8.067 \cdot 10^{-6}$ $\hat{K}_2 = 1.555 \cdot 10^{-4}$	$\tilde{K}_1 = -0.2120$ $\tilde{K}_2 = 5.051 \cdot 10^{-2}$	$\bar{K}_1 = -0.2016$ $\bar{K}_2 = 5.047 \cdot 10^{-2}$	$\bar{K}_1 = -0.2016$ $\bar{K}_2 = 5.047 \cdot 10^{-2}$
$\hat{K}_3 = 2.304 \cdot 10^{-5}$ $\hat{K}_4 = 7.035 \cdot 10^{-6}$	$\tilde{K}_3 = 2.08 \cdot 10^{-4}$ $\tilde{K}_4 = 3.587 \cdot 10^{-2}$	$\bar{K}_3 = 0$ $\bar{K}_4 = 3.692 \cdot 10^{-2}$	$K_3 = 1.015 \cdot 10^{-4}$ $K_4 = 3.686 \cdot 10^{-2}$
$\hat{k}_L a = 1.006 \cdot 10^2 h^{-1}$ $\hat{K}_5 = -7.896 \cdot 10^{-6}$ $\hat{K}_6 = -8.119 \cdot 10^{-5}$	$\tilde{k}_L a = 1.333 \cdot 10^2 h^{-1}$ $\tilde{K}_5 = 6.69 \cdot 10^{-4}$ $\tilde{K}_6 = 1.129 \cdot 10^{-3}$	$\bar{k}_L a = 1.244 \cdot 10^2 h^{-1}$ $\bar{K}_5 = 7.667 \cdot 10^{-4}$ $\bar{K}_6 = 1.261 \cdot 10^{-3}$	$k_L a = 1.309 \cdot 10^2 h^{-1}$ $K_5 = 6.632 \cdot 10^{-4}$ $K_6 = 1.126 \cdot 10^{-3}$
$\hat{S} = 2.7831$	$\tilde{S} = 0.8657$	$\bar{S} = 0.5199$	$S = 0.3280$

В Табл. 4 са показани получените стойности на параметрите при директното решаване на системата от моделни уравнения с произволно подбрани начални приближения на стойностите на коефициентите (колона 1) и резултатите, получени в отделните последователни етапи на решаване на тази система посредством предложения йерархичен подход (колони 2, 3, 4).

На фиг. 2-5 са показани сравненията между експерименталните данни за изменението на концентрациите с времето и получените данни от модела при така намерените стойности на коефициентите.

Получените резултати от моделирането показват, че предложеният модел правилно отразява характера на зависимостта на изменение концентрациите на биомасата, глюкозата, кислорода и глюконовата киселина с времето.

Уравнението (3.3.30) е решено с помощта на MATLAB R2007b с първоначално зададени стойности на параметрите в модела и последващо минимизиране на функцията “ Q ”.

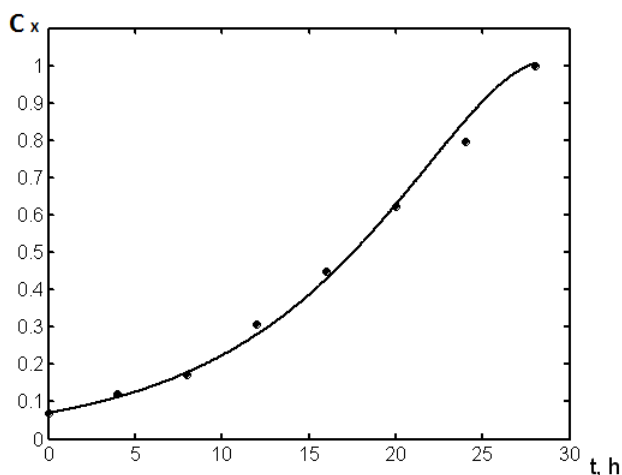


Fig. 2. Сравнение на изчислените стойности и експерименталните данни за концентрацията на биомасата

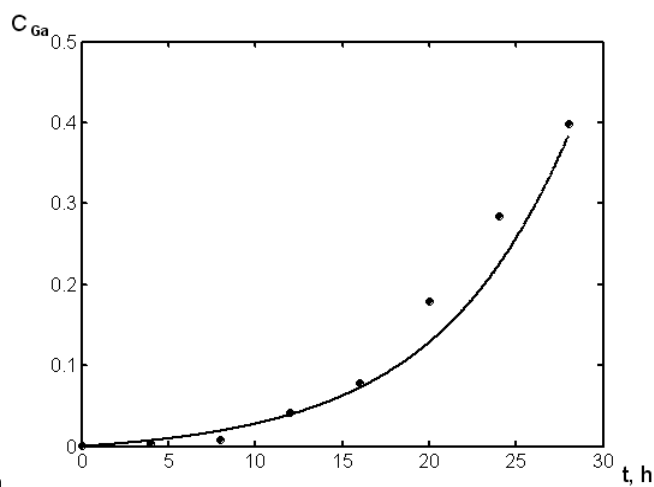


Fig. 3. Сравнение на изчислените стойности и експерименталните данни за концентрацията на глюконова киселина

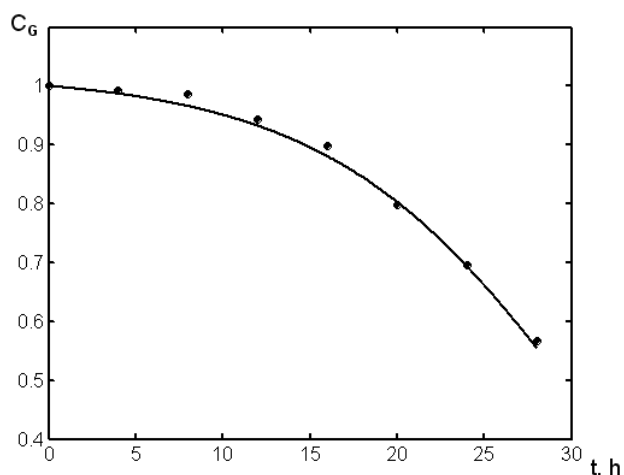


Fig. 4. Сравнение на изчислените стойности и експерименталните данни за концентрацията на глюкозата

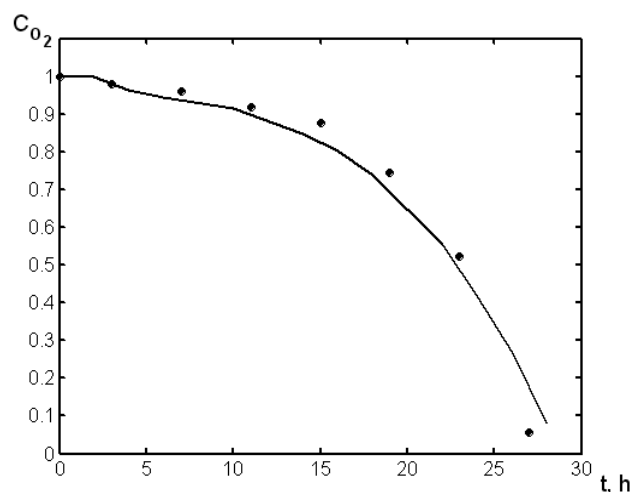


Fig. 5. Сравнение на изчислените стойности и експерименталните данни за концентрацията на кислорода

Стойностите на параметрите са получени на базата на реални експериментални данни за ферментационния процес, като моделните уравнения са решени с първоначално зададени стойности на параметрите в модела (начално йерархично ниво) и последващо минимизиране на целевата функция.

Резултатите показват намаляване на грешката на модела при всяко следващо йерархично ниво и добро съответствие с експерименталните данни при последното ниво.

Предложеният *йерархичен подход* позволява определянето на коефициенти при многопараметрични модели, в случаите когато целевата функция е многоекстремална.

От анализа на резултатите от моделирането може да се направи извода, че предложеният модел правилно отразява характера на зависимостта на изменение на концентрациите на субстратите и продукта на реакцията с времето.

3.4. Моделиране кинетиката на нарастване на червени микроводорасли в ерлифтен фотобиореактор

Червените микроводорасли са естествена суровина за производството на висококачествени химични съединения за нуждите на фармацевтичната и хранителната индустрии, както и биоактивни вещества, витамини, пигменти и мастни киселини [32-34]. Освен това, в дългосрочен план, водораслите могат да се използват за производството на екологични чисти горива [35, 36]. Фотосинтезиращите водорасли се използват във

фотобиореакторите, като източника на светлина, необходим за протичането на процеса, може да бъде изкуствен или естествен. Наличието и интензитетът на светлината е главен фактор, контролиращ продуктивността на фотосинтезиращите култури [37, 38].

Протичането на процеса фотосинтеза е свързано с наличието на светлина и въглероден двуокис [39, 40].

Скоростта на нарастване на биомасата е определена от интензитета на светлинния поток и скоростта на междуфазово масопренасяне на въглеродния двуокис [41, 42]. В случаите, когато светлинния поток е постоянен, то процеса се лимитира от концентрацията на въглеродния двуокис в течната фаза, т.е. от скоростта на междуфазово масопренасяне на въглеродния двуокис [43, 44]. Моделирането на кинетиката на процеса на фотосинтеза в ерлифтен реактор е една от поставените задачи в този дисертационен труд.

Разглеждаме процеса фотосинтеза, протичащ в ерлифтен реактор, в който междуфазовия масопренос на CO_2 се осъществява във възходящата зона, а фотобиохимичната реакция-в низходящата зона на реактора [45, 46]. Теоретичният анализ на процеса се прави на базата на дифузионен модел на ерлифтен реактор [47, 48]. В случай на нестационарен процес, ерлифтният реактор може да се приеме за циркуляционен тръбен реактор, в който разпределението на въглеродния двуокис в течната фаза се определя от уравнението на конвекция-дифузия с обемна реакция:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u \frac{\partial c}{\partial x} = D \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial c}{\partial r} + \frac{\partial^2 c}{\partial r^2} \right) - kc;$$

$$t = 0, \quad c = c_o; \quad r = 0, \quad \frac{\partial c}{\partial r} = 0; \quad r = r_o, \quad \frac{\partial c}{\partial r} = 0;$$

$$x = 0, \quad c(t, r, 0) = \bar{c}(t, l), \quad \bar{u}\bar{c}(t, l) = u\bar{c}(t, l) - D \frac{\partial c}{\partial x}, \quad (3.4.1)$$

където $u(r)$ и $c(x, r, t)$ са разпределението на скоростта и концентрацията на CO_2 в течната фаза на реактора, \bar{u} и \bar{c} -средната скорост и концентрация на CO_2 на вход (изход) на реактора, D -коефициент на дифузия, k -скоростен коефициент на обемната реакция, l -височина на течността в реактора, r_o -радиус на реактора, t -време.

Задачата (3.4.1) ще бъде анализирана в безизмерна форма, използвайки характерните мащаби на процеса:

$$t = t_0 T, \quad x = l X, \quad r = r_0 R, \quad u = \bar{u} U, \quad c = c_0 C, \quad \bar{c} = c_0 \bar{C}. \quad (3.4.2)$$

След въвеждане на безизмерните величини, уравнението (3.4.1) има вида:

$$\frac{\partial C}{\partial T} + \frac{\bar{u}t_o}{l} U \frac{\partial C}{\partial X} = \frac{\bar{u}t_o}{l} \frac{1}{Pe} \left[\frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{l^2}{r_o^2} \left(\frac{1}{R} \frac{\partial C}{\partial R} + \frac{\partial^2 C}{\partial R^2} \right) \right] - kt_o C;$$

$$T = 0, C = 1; \quad R = 0, \frac{\partial C}{\partial R} = 0; \quad R = 1, \frac{\partial C}{\partial R} = 0;$$

$$X = 0, C(T, R, 0) = \bar{C}(T, 1), \quad \bar{C}(T, 1) = UC - \frac{1}{Pe} \frac{\partial C}{\partial X}, \quad (3.4.3)$$

където

$$Pe = \frac{\bar{u}l}{D}. \quad (3.4.4)$$

Нестационарността на процеса е резултат от рециркулацията на течността и зависи от обемната скорост на реакцията (k), т.е. за характерно време може да се използва:

$$t_o = \frac{l}{k} \quad (3.4.5)$$

След заместване на характерното време, изразено по този начин, в уравнение (3.4.3) се получава:

$$\delta \left(\frac{\partial C}{\partial T} + C \right) = \frac{1}{Pe} \left[\frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{l^2}{r_o^2} \left(\frac{1}{R} \frac{\partial C}{\partial R} + \frac{\partial^2 C}{\partial R^2} \right) \right] - U \frac{\partial C}{\partial X}, \quad (3.4.6)$$

където $\delta = \frac{kl}{\bar{u}}$ е параметър, който има ниски стойности ($\delta \ll 1$) в случаите на бавна обемна реакция ($k \ll 1$).

Уравнение (3.4.6) се решава посредством прилагане на метода на отделящите се променливи, при който се решават задачи с гранични и начални условия [49]

Използването на този метод дава възможност решението на уравнение (3.4.6) да се търси от вида:

$$C(T, R, X) = C^{(0)}(R, X) + C^{(1)}(T) \quad (3.4.7)$$

От уравнения (3.4.3) и (3.4.6) се получава:

$$\delta \left(\frac{\partial C^{(1)}}{\partial T} + C^{(0)} + C^{(1)} \right) = \frac{1}{Pe} \left[\frac{\partial^2 C^{(0)}}{\partial X^2} + \frac{l^2}{r_o^2} \left(\frac{1}{R} \frac{\partial C^{(0)}}{\partial R} + \frac{\partial^2 C^{(0)}}{\partial R^2} \right) \right] - U \frac{\partial C^{(0)}}{\partial X};$$

$$T = 0, C^{(0)} = 0, C^{(1)} = 1; \quad R = 0, \frac{\partial C^{(0)}}{\partial R} = 0; \quad R = 1, \frac{\partial C^{(0)}}{\partial R} = 0;$$

$$X = 0, C^{(0)}(R, 0) = C^{(0)}(1), \quad \bar{C}^{(0)}(1) + \bar{C}^{(0)}(1) = U(C_0 + C_1) - \frac{1}{Pe} \frac{\partial C^{(0)}}{\partial X}. \quad (3.4.8)$$

Решението за $C^{(0)}(R, X)$ може да се получи от уравнение (3.4.8) като нулево приближение по отношение на параметъра δ :

$$U \frac{\partial C^{(0)}}{\partial X} = \frac{1}{Pe} \left[\frac{\partial^2 C^{(0)}}{\partial X^2} + \frac{l^2}{r_o^2} \left(\frac{1}{R} \frac{\partial C^{(0)}}{\partial R} + \frac{\partial^2 C^{(0)}}{\partial R^2} \right) \right];$$

$$X = 0, C^{(0)}(R, 0) = 0, \quad \frac{\partial C^{(0)}}{\partial X} = 0.$$

$$R = 0, \frac{\partial C^{(0)}}{\partial R} = 0; \quad R = 1, \frac{\partial C^{(0)}}{\partial R} = 0. \quad (3.4.9)$$

Граничните условия в уравнение (3.4.9) за $X=0$ следват от липсата на обемна реакция $\left(\frac{\partial C_o}{\partial X} = 0 \right)$ и началните условия при $T = 0$ ($C_o = 0$). При тези условия решението на това уравнение е $\{C^{(0)}(R, X) \equiv 0\}$, което позволява да се получи $C^{(1)}(T)$:

$$\frac{\partial C^{(1)}}{\partial T} = -C^{(1)}, \quad T = 0, \quad C^{(1)} = 1; \quad (3.4.10)$$

от където се получава непосредствено:

$$C^{(1)} = e^{-T}. \quad (3.4.11)$$

Резултатът показва, че за бавните обемни реакции скоростта на процеса се определя от тяхната кинетика и колонния (ерлифтен) реактор е в режим на идеално смесване. По този начин моделът на процеса на фотосинтеза в ерлифтният реактор се редуцира до модел на кинетиката на фотосинтезата.

3.4.1. Математичен модел

Експерименталните данни за увеличаване на концентрацията на водораслите (*microalgae Porphyridium sp*) с времето [37] водят до хипотезата, че механизмът на нарастване на водораслите включва два процеса, чиито скорости се изравняват във времето и концентрацията на водораслите става постоянна.

Кинетичното уравнение, което описва този механизъм има вида:

$$\frac{dc_X}{dt} = \mu_{max} \frac{c}{k_1 + c} c_X - k_0 c_X, \quad (3.4.12)$$

където $c_X = c_X(t)$, $c = c(t)$.

Porphyridium sp са култивирани в изкуствена морска вода [47, 48]. Обогащеният с 3% CO₂ въздух барботира в реактора. За източник на светлина се използва флуоресцентна лампа, осигуряваща фотонен поток с интензитет $250 \mu Em^{-2}s^{-1}$. Всички експерименти са проведени в стая с контролирана температура 23 – 25 °C [37].

Експериментите за култивиране на *Porphyridium sp* са проведени в лабораторен ерлифтен биореактор с обем $13 dm^3$ в условия, близки до режим на идеално смесване в течната фаза [48].

Изменението на концентрацията на CO₂ с времето $c(t)$ зависи от скоростта на консумация на CO₂ за нарастване на биомасата и скоростта на междуфазовия масопренос.

$$\frac{dc}{dt} = W - A_x \mu_{max} \frac{c}{k_1 + c} c_X. \quad (3.4.13)$$

Обемната скорост на масопренасяне W може да се определи от средната концентрация на CO₂ в газовата фаза на вход и изход от колоната.

$$W = \frac{u}{h} (c_{gas}^{(0)} - c_{gas}^h). \quad (3.4.14)$$

Обемната скорост на масопренасяне W зависи от локалната скорост на масопренасяне q по височина на колоната:

$$W = \frac{1}{h} \int_0^h q dx, \quad (3.4.15)$$

където

$$q = k(c_{gas} - \chi c). \quad (3.4.16)$$

Приемаме, че концентрацията на CO₂ в газовата фаза се променя линейно по височина на колоната от $c_{gas}(0, t) = c_{gas}^{(0)}$ до $c_{gas}(h, t) = c_{gas}^h$:

$$c_{gas} = c_{gas}^{(0)} - \frac{\chi}{h} (c_{gas}^{(0)} - c_{gas}^h) \quad (3.4.17)$$

Заместването на c_{gas} в уравнения (3.4.15, 3.4.16) води до израза:

$$W = k \left(\frac{c_{gas}^{(0)} + c_{gas}^h}{2} - \chi c \right). \quad (3.4.18)$$

Изразите за обемната скорост на масопренасяне (3.4.14, 3.4.18) позволяват да се определи средната концентрация на CO_2 в газовата фаза на изход от колоната:

$$c_{gas}^h = \frac{\left(\frac{u}{h} - \frac{k}{2} \right) c_{gas}^{(0)} + k\chi c}{\frac{u}{h} + \frac{k}{2}}. \quad (3.4.19)$$

Моделните уравнения на процеса (3.4.12-3.4.14, 3.4.19) имат следните начални условия:

$$t = 0, \quad c_X = c_X^{(0)}, \quad c = c^{(0)}, \quad (3.4.20)$$

където $c_X^{(0)}$ е началната концентрация на биомасата, а $c^{(0)} = c_{gas}^{(0)} / \chi$, ако процесът започва при стартиране на осветяването.

Този модел се характеризира с четири параметъра, които е необходимо да се определят от експериментални данни.

3.4.2. Определяне на параметрите в модела

Поради факта, че математичното описание на инженерно-химичните процеси много често съдържа голям брой уравнения и параметри и целевата функция (функцията на най-малките квадрати) е многоекстремална, са необходими много добри начални приближения на стойностите на параметрите в уравненията при стартиране на итеративните процедури за търсене на екстремум. За определяне на параметрите в отделните уравнения се използва полиномна апроксимация на експерименталните данни за процеса.

При моделирането на кинетиката на този процес субституцията е затруднена, тъй като са предоставени експериментални данни единствено за изменението на концентрацията на червените микроводорасли с времето [37].

Експерименталните данни за концентрацията на биомасата се заместват с полиномна апроксимация:

$$c_X(t) = P(t), \quad \frac{dc_X}{dt} = \frac{dP}{dt} = P'(t), \quad A(t) = \frac{P'(t)}{P(t)}. \quad (3.4.21)$$

Отсъствието на експериментални данни за промяната на концентрацията на въглеродния двуокис ще се преодолее чрез данни за $\bar{c}(t)$, получени от уравнение (3.4.12), след въвеждане на уравнение (3.4.21):

$$\bar{c}(t) = \frac{k_1[k_0 + A(t)]}{\mu_{max} - k_0 - A(t)}. \quad (3.4.22)$$

Данните за $\bar{c}(t)$ са получени от експерименталната информация за биомасата, но това е условно, т.като тези данни зависят и от няколко параметъра μ_{max}, k_0, k_1 , които са обект на определяне.

За определяне на параметрите в модела е използван методът на най-малките квадрати. За целта е необходимо да се минимизира функцията Q :

$$Q = \sum_{i=1}^N [c_X(t_i) - c_X^{exp}(t_i)]^2 + \alpha \sum_{i=1}^N [c(t_i) - \bar{c}(t_i)]^2, \quad (3.4.23)$$

където $t_i (i = 1, \dots, N)$ са времената, в които биомасата е количествено определена, $\alpha = 10 \div 100$ е „специфично тегло”, компенсиращо разликите в порядъка на двете суми. Функцията Q се определя след решаване на моделните уравнения (3.4.12, 3.4.13, 3.4.18, 3.4.19) при зададени стойности на параметрите μ_{max}, k_0, k_1 .

Началните условия на процеса (3.4.20) са заместени с:

$$t = 0, \quad c_X^{(0)} = c_{X_{exp}}^{(1)}, \quad c^{(0)} = \frac{k_1 A(0)}{\mu_{max} - A(0)}, \quad (3.4.24)$$

като се допуска, че в началото на процеса влиянието на втория член в уравнение (3.4.12), т.е. k_0 , може да се пренебрегне.

Експерименталните данни за нарастването на микроводораслите показват, че при

$t \geq t_N, c_X = c_{X_N}, \frac{dc_X}{dt} = 0$ и от уравнение (3.4.12) следва:

$$c_N = c(t_N) = \frac{k_0 k_1}{\mu_{max} - k_0} = const. \quad (3.4.25)$$

При тези условия $(t \geq t_N) \frac{dc}{dt} = 0$, т.е.

$$\frac{u}{h} \left[c_{gas}^{(0)} - c_{gas}^h(t_N) \right] - A_x \mu_{max} \frac{c_N}{k_1 + c_N} c_{X_N} = 0, \quad (3.4.26)$$

където

$$c_{gas}^h(t_N) = \frac{c_{gas}^{(0)} \left(\frac{u}{h} - \frac{k}{2} \right) + k \chi c_N}{\frac{u}{h} + \frac{k}{2}}. \quad (3.4.27)$$

Заместването на уравнение (3.4.25) в уравнения (3.4.26, 3.4.27) и впоследствие на уравнение (3.4.26) в (3.4.27) води до израз, даващ връзка между параметрите μ_{max}, k, k_0, k_1 , т.е. дава възможност за определяне на k като функция от другите параметри:

$$k = \frac{2u A_x c_{X_N} k_0 (\mu_{max} - k_0)}{2u (c_{gas}^{(0)} \mu_{max} - c_{gas}^{(0)} k_0 - \chi k_0 k_1) - A_x h c_{X_N} k_0 (\mu_{max} - k_0)}. \quad (3.4.28)$$

Заместването на израза (3.4.28) в уравнението за определяне на средната концентрация на CO_2 в газовата фаза на изход от апарата (3.4.19) води до моделно уравнение, съдържащо три параметъра и в резултат функцията на най-малките квадрати Q (3.4.23) зависи само от параметрите μ_{max}, k_0, k_1 .

Параметрите в модела са определени посредством минимизиране на Q (3.4.23), използвайки минимизационната процедура *fminsearch* на MATLAB R2007b.

Получените резултати са:

$$\mu_{max} = 0.73859 h^{-1}, k = 2.4999 h^{-1}, k_0 = 0.01095 h^{-1}, k_1 = 0.27149 kg/m^3. \quad (3.4.29)$$

Изследвана е коректността на обратната идентификационна задача [50]. За тази цел полиномът $P(t)$ е използван за получаване на друг набор от данни за растежа на биомасата. Решаването на параметричната идентификационна задача с новополучените данни за растежа на микроводораслите води до резултатите:

$$\mu_{max} = 0.91956 h^{-1}, k = 2.817 h^{-1}, k_0 = 0.01218 h^{-1}, k_1 = 0.25239 kg/m^3. \quad (3.4.30)$$

Малката разлика в стойностите на получените параметри (3.4.29) и (3.4.30) отразява коректността на обратната задача, т.е. решението на задачата не е чувствително по отношение на грешката на експерименталните данни.

Използването на израза, даващ връзка между параметрите μ_{max}, k, k_0, k_1 (3.4.28) сравнително опростява решението на задачата, но това уравнение е изведено следствие на

хипотезата, че $\frac{dc_X}{dt} = 0$ за $t \geq t_N$. По този начин това уравнение (3.4.28) може да се приеме като приближение.

Коефициентът k може да се получи по-точно чрез минимизиране на функцията Q като функция на четири параметъра, използвайки резултатите (3.4.29) като начални приближения в минимизационната процедура. Получените резултати са:

$$\mu_{max} = 0.93139 \text{ h}^{-1}, k = 2.7417 \text{ h}^{-1}, k_0 = 0.01127 \text{ h}^{-1}, k_1 = 0.06419 \text{ kg/m}^3. \quad (3.4.31)$$

3.4.3. Анализирание на резултатите

Скоростта на газа е много важна величина в пневматичните реактори. Количеството на газа, подавано в реактора, силно влияе върху смесването в средата, разпределянето на клетките в реактора, растежната способност на клетките и абсорбцията на въглеродния двуокис. Когато скоростта на газа се увеличава се подобрява смесването в реактора и следователно-масопреноса [37, 51].

Интензификацията на растежа на водораслите с повишаващата се скорост на газа се обяснява с подобряването на масопреноса в реактора. Очевидно е, че междуфазовият масопренос е много важен, т.като е отговорен за захранването с въглероден двуокис, необходим за нарастването на клетките. Този е етап е относително бърз поради високата разтворимост на въглеродния двуокис в използвания газ. В рамките на самата течност, далече от междуфазовата повърхност газ-течност, се различават два механизма на масопренос. Първият-конвективен масопренос се реализира открай докрай в реактора и е свързан с пълното циркулиране на течността и макросмесването. Това е функция от модела на реактора, физичните характеристики на средата и скоростта на газовия поток. Вторият механизъм е преноса от обема на течността до суспендираната клетка [37].

Масопреносът течност-клетка е повлиян от свойствата на течността и динамичните характеристики на флуидите, и зависи от масата на клетките.

Сравнението на получените от модела резултати и експерименталните данни (вж.Таблица 5) при различни “специфични” скорости на газа (дебит за единица пълно сечение на колоната) е показано на фигури (6-11). В Таблица 5 са показани стойностите на параметрите в модела и на функцията на най-малките квадрати Q .

Приемайки, че скоростта на газа не оказва влияние върху коефициентите μ_{max}, k_0, k_1 , можем да изчислим техните средни стойности $\bar{\mu}_{max}, \bar{k}_0, \bar{k}_1$ за трите дадени “специфични”

скорости на газа. С тези средни стойности на параметрите се минимизира целевата функция Q и се определя коефициента на масопренасяне \bar{k} :

$$\bar{\mu}_{\max} = 0.9749 \text{ h}^{-1}, \bar{k}_0 = 0.0104 \text{ h}^{-1}, \bar{k}_1 = 0.041 \text{ kg} / \text{m}^3. \quad (3.4.32)$$

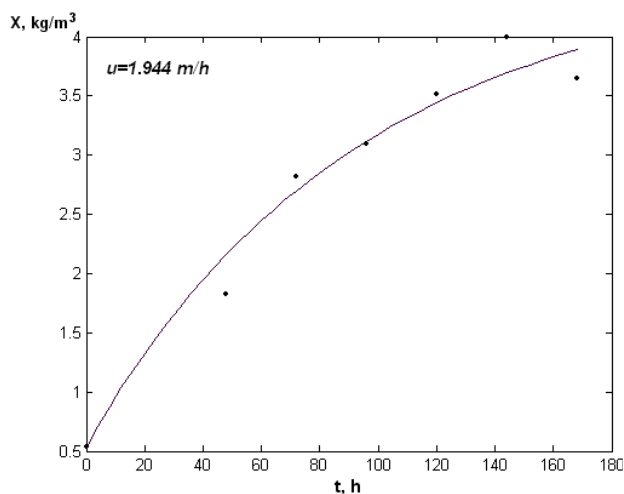
Получените резултати показват зависимостта на коефициента на масопренасяне от “специфичната” скорост на газа:

$$k = 5.286u^{-0.3811}. \quad (3.4.33)$$

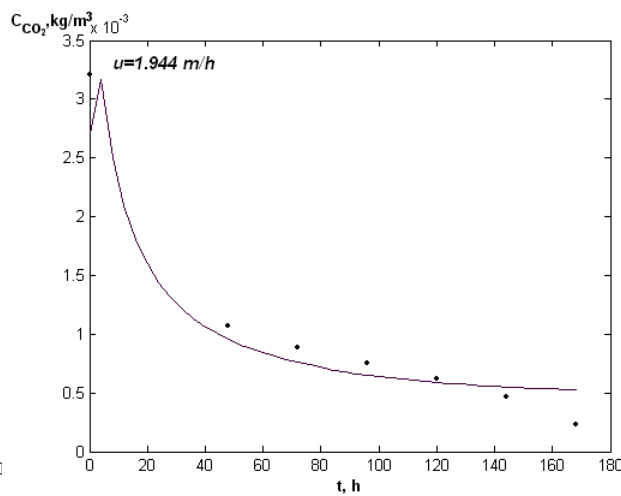
Данните за изменението на концентрацията на въглеродния двуокис в течната фаза $c(t)$ са получени от уравнение (3.4.22) с вече изчислените стойности на параметрите (вж. Табл. 5).

Предложеният метод за параметрична идентификация дава възможност за решаване на задачата в случаите, когато не се разполага с достатъчно пълна експериментална информация за процеса.

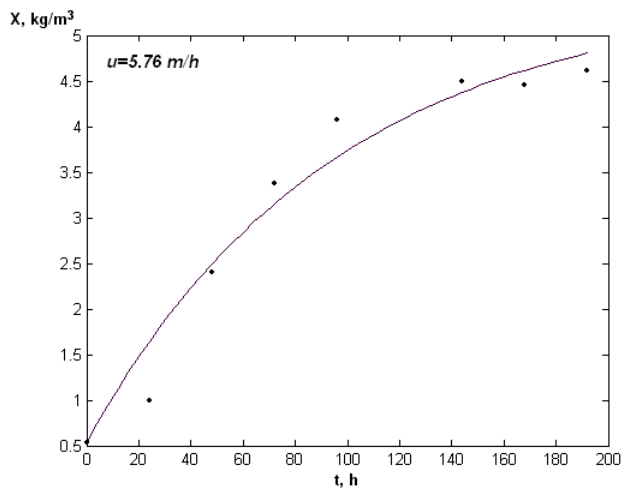
Сравнението на теоретичните и експерименталните данни (Фигури 6-11) показват, че точността на решението може да се повиши, използвайки по-точни експериментални данни за началото на процеса $0 \leq t \leq 24 \text{ h}$.



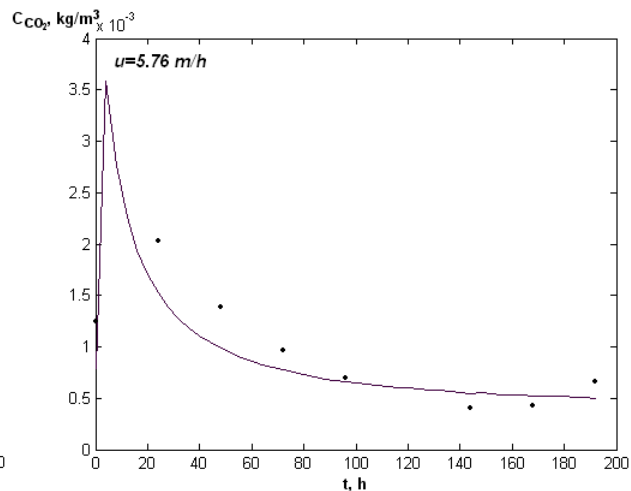
Фиг.6. Сравнение на теоретичните резултати и експерименталните данни за концентрацията на биомасата



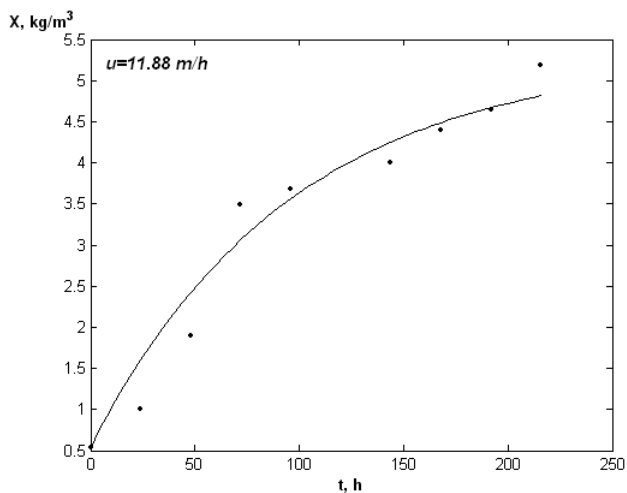
Фиг.7. Сравнение на теоретичните резултати и експерименталните данни за концентрацията на CO₂ в течната фаза



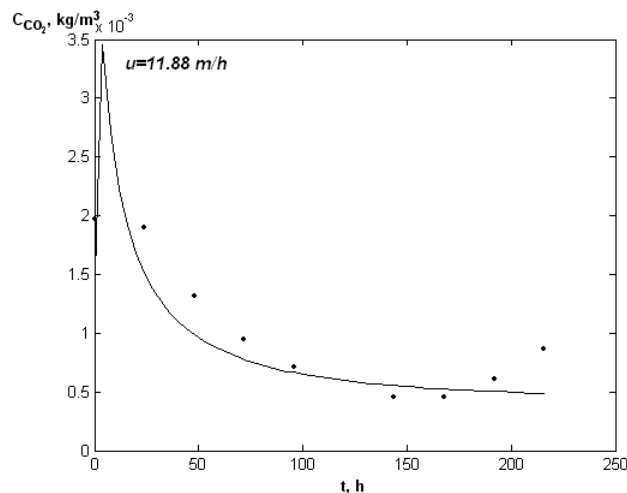
Фиг.8. Сравнение на теоретичните резултати и експерименталните данни за концентрацията на биомасата



Фиг.9. Сравнение на теоретичните резултати и експерименталните данни за концентрацията на CO₂ в течната фаза



Фиг.10. Сравнение на теоретичните резултати и експерименталните данни за концентрацията на биомасата



Фиг.11. Сравнение на теоретичните резултати и експерименталните данни за концентрацията на CO₂ в течната фаза

Доброто съответствие между теоретичните резултати и експерименталните данни потвърждава хипотезата, че механизма на растежа включва два процеса, чиито скорости остават постоянни с течение на времето и концентрацията на биомасата остава постоянна.

От теоретичния анализ на уравненията в модела и от факта за съществуването на връзка между концентрациите на биомасата и въглеродния двуокис в течната фаза е показана възможността за заместване на липсващи експериментални данни с условни, като последните зависят от параметрите в модела.

Таблица 5 Стойности на параметрите в модела за различни „специфични“ скорости на газа

„Специфична“ скорост на газа (u), m/h	$u = 1.944 m/h$	$u = 5.76 m/h$	$u = 11.88 m/h$
Стойности на параметрите в модела	$\mu_{max} = 1.0185 h^{-1}$ $k_0 = 0.0094 h^{-1}$ $k_1 = 0.0177 kg/m^3$ $k = 3.7282 h^{-1}$ $Q = 0.281$	$\mu_{max} = 0.93139 h^{-1}$ $k_0 = 0.01127 h^{-1}$ $k_1 = 0.06419 kg/m^3$ $k = 2.7417 h^{-1}$ $Q = 0.7213$	$\mu_{max} = 0.45007 h^{-1}$ $k_0 = 0.00805 h^{-1}$ $k_1 = 0.7758 kg/m^3$ $k = 1.6004 h^{-1}$ $Q = 1.304$
Средни стойности на параметрите в модела	$\bar{\mu}_{max} = 0.9749 h^{-1}$ $\bar{k}_0 = 0.0104 h^{-1}$ $\bar{k}_1 = 0.041 kg/m^3$ $\bar{k} = 4.1934 h^{-1}$ $Q = 0.2896$	$\bar{\mu}_{max} = 0.9749 h^{-1}$ $\bar{k}_0 = 0.0104 h^{-1}$ $\bar{k}_1 = 0.041 kg/m^3$ $\bar{k} = 2.5684 h^{-1}$ $Q = 0.7154$	$\bar{\mu}_{max} = 0.9749 h^{-1}$ $\bar{k}_0 = 0.0104 h^{-1}$ $\bar{k}_1 = 0.041 kg/m^3$ $\bar{k} = 2.1267 h^{-1}$ $Q = 1.0334$

Разработеният йерархичен подход за параметрична идентификация е използван и при моделиране кинетиката на нарастване на червени микроводорасли в ерлифтен фотобиореактор, за да се покаже неговата приложимост и в случаите, когато не се разполага с пълна експериментална информация за протичането на процесите.

Доказана е коректността на параметричната идентификационна задача, а представеният метод е приложим за различни фотосинтезни процеси.

4. Изводи и приноси

От получените резултати могат да се направят следните изводи, имащи характер на научни приноси:

- Направен е анализ на некоректните параметрични идентификационни задачи и е показано, че тази некоректност се дължи на наличието на малък параметър (дифузия, вискозитет, топлопроводност) пред старшата производна в моделите на инженерно-химичните процеси. Сравнени са метода на регуляризация и симплекс метода *fminsearch* за определяне на параметрите в случаите на некоректност на обратната задача, използвайки Matlab R2007b.
- Разработен е *йерархичен метод* за решаване на многопараметрични модели с използването на полиномни апроксимации на експериментални данни, необходими за идентификацията на параметрите. Получените стойности на коефициентите посредством този йерархичен подход могат да се използват като нулеви приближения в параметричната идентификационна задача и те се явяват начално йерархично ниво в идентификационната процедура.
- Предложеният йерархичен метод е приложен при моделирането на процеса на ферментация на глюкоза в ерлифтен биореактор. Стойностите на параметрите са получени на базата на реални експериментални данни за ферментационния процес. Получените резултати от моделирането показват, че предложеният модел правилно отразява характера на зависимостта на изменение на концентрациите на биомасата, глюкозата, кислорода и глюконовата киселина с времето.
- Йерархичният подход за параметрична идентификация е използван и за решаване на задачи в случаите, когато не се разполага с пълна експериментална информация за процеса. Създаден е *кинетичен модел* на процеса на нарастване на червени микроводорасли в ерлифтен фотобиореактор и е показана възможността за заместване на липсващи експериментални данни с условни, като последните зависят от параметрите в кинетичния модел. Доказана е коректността на параметричната идентификационна задача, а предложеният метод е приложим за различни фотосинтезни процеси.

Цитирана литература в автореферата

1. **Попова Р.**, Boyadjiev Chr., *On the model parameter identification of engineering processes*, In: Proceeding, 14th Workshop on Transporter Phenomena in Two-Phase Flow, Bansko Resort, Bulgaria, p. 89, 2010.
2. Boyadjiev Chr., *Fundamentals of modeling and simulation in chemical engineering and technology*, Sofia: Publ. Bulg. Acad. Sci., Inst. Chem. Eng., (in Bulgarian), 1993;
3. Бояджиев Хр., *Основи на моделирането и симулирането в инженерната химия и химичната технология*, ИК „Феномен”, София, 1993;
4. Boyadjiev, Chr., Dimitrova, E., *On the model parameter identification and the incorrectness of the inverse problem, 1. Iterative method*, In: Proceeding, 7th Workshop on Transport Phenomena in Two-Phase Flow, Varna, Bulgaria, p. 45, 2002;
5. Алифанов О., Артюхин Е., Румянцев С., *Экспериментальные методы решения некорректных задач*, Наука, Москва, 1988;
6. Boyadjiev Chr., *Diffusion models and scale-up*, Int.J.Heat Mass Transfer, 49, p. 796, 2006;
7. **Попова Р.**, Boyadjiev, Chr., *On the regularization of the parameter identification problems*, In: Proceeding, 9th Workshop on Transport Phenomena in Two-Phase Flow, Borovets, Bulgaria, p.145, 2004;
8. Boyadjiev Chr., Dimitrova E., *An iterative method for model parameter identification 1. Incorrect problem*, , In: Proceeding, 8th Workshop on Transport Phenomena in Two-Phase Flow, Sunny Beach, Bulgaria, p.105, 2003;
9. Boyadjiev Chr., Dimitrova E., *An iterative method for model parameter identification 2. Essentially incorrect problem*, , In: Proceeding, 8th Workshop on Transport Phenomena in Two-Phase Flow, Sunny Beach, Bulgaria, p.123, 2003;
10. Boyadjiev Chr., Dimitrova E., *An iterative method for model parameter identification 4. Differential equation model*, , In: Proceeding, 9th Workshop on Transport Phenomena in Two-Phase Flow, Borovets, Bulgaria, p.137, 2004;
11. Horvat A., Mavko B., *Hierarchic modeling of heat transfer processes in heat exchangers*, Int. J. Heat and Mass Transfer, 48, p. 361, 2005;

12. Beschkov, V., Velizarov, S., *Oxygen Transfer and Glucose to Gluconic Acid oxidation by Cells of Gluconobacter oxydans NBIMCC 104*, Comptes Rendus Acad. Bulg. Sci., 47 (8), p.53, 1994;
13. **Popova P.**, Boyadjiev Chr., *On the modeling of fermentation systems*, In: Proceeding, 10th Workshop on Transport Phenomena in Two-Phase Flow, Sunny Beach, Bulgaria, p.149, 2005;
14. **Popova P.**, Boyadjiev Chr., Hierarchical approach for parameter identification of multiparameter models, Biochemical Engineering Journal, 39, 2008, 397–402;
15. Milson P. E., Meers J. L., *Gluconic and itaconic acids*, In *Comprehensive Biotechnology*, 3., Edited by M. Moo Young. Oxford: Pergamon Press, p. 681, 1985;
16. Prescott F.J., Shaw J.K., Bilello J.P., *Gluconic acids and its derivatives*, Ind. Eng. Chem., 1953;
17. Miura Y., Tsusho K., Miyamoto K., *Kinetic Studies of Gluconic Acid Fermentation, Using Aspergillus niger*, J. Ferment. Technol., 1970;
18. Denchev, P.D., Conger B.V., *In vitro culture of switchgrass: Influence of 2,4-D and picloram in combination with benzyladenine on callus initiation and regeneration*, Plant Cell Tissue Organ Cult., 40, p. 43, 1995;
19. Znad H.et al., *Production of gluconic acid from glucose by Aspergillus niger: growth and non-growth conditions*, Process Biochem., 39, p. 1341, 2004;
20. Znad, H., Bales, V., Kawase, J., *A kinetic Model for Gluconic Acid Production by Aspergillus niger*, Chem. Papers, 58 (1), p. 23, 2004;
21. Singh O.V., Jain R.K., Singh R.P., *Gluconic acid production under varying fermentation conditions by Aspergillus niger*, J. Chem. Technol. Biotechnol.,78 (2), p.208, 2003,
22. Ramachandran S., Fontanille P., Pandey A., Larroche C., *Gluconic Acid: Properties, Applications and Microbial Production*, Food Technol. Biotechnol., 44 (2), p. 185, 2006;
23. De Ley J., *Comparative Carbohydrate Metabolism and a Proposal for a Phylogenetic Relationship of the Acetic Acid Bacteria*, J. Gen. Microbiol., 24, p. 31, 1961;
24. Olijve W., Kok J.J., *Analysis of Growth of Gluconobacter oxydans in Glucose Containing Media*, Arch. Microbiol., 121, p. 283, 1979;

25. Oosterhuis N.M.G., Groesbeek N.M., Kossen N.W.F., *Influence of Dissolved Oxygen Concentration on the Oxygen Kinetics of Gluconobacter oxydans*, Appl. Microbiol. Biotechn., 21, p. 42, 1985;
26. Traeger M., Qazi G.N., Onken U., *Comparison of Air-lift and Stirred Reactors for Fermentation with Aspergillus niger*, J. Ferment. Bioeng., 68, p. 112, 1989;
27. Oosterhuis N.M.G., Kossen N.W.F., Olivier A.P.C., Schenk E.S., *Scale-Down and Optimization Studies of the Gluconic Acid Fermentation by Gluconobacter oxydans*, Biotechnol. Bioeng., 27, p. 711, 1985;
28. Павлов К. Ф., Романков П. Г., Носков А. А., *Примеры и задачи по процессу и аппарату в химической технологии*, София, 1990;
29. Щелкунова С.А., Войнова Г.Н., *Влияние условия культивирования на образование кальциевой соли 5-кетоглюконовой кислоты уксуснокислыми бактериями*, Микробиология, 38, p. 583, 1969;
30. Shiraishi F., Kawakami K., Kono S., Tamura A., *Characterization of Production of Free Gluconic Acid by Gluconobacter suboxydans*, Biotechnol. Bioeng., 33, p. 1413, 1989;
31. Luedeking R., Piret E. L., *Kinetic study of the lactic acid fermentation: Batch process at controlled pH*, Biotechnol. Bioeng., 67 (6), p. 636, 1959;
32. Barbosa M., Hoogakker J., Wijffels R., *Optimization of cultivation parameters in photobioreactors for microalgae cultivation using the A-stat technique*, Biomol. Eng., 20, p. 115, 2003;
33. Merchuk J., Gluz M., Mukmenev I., *Comparison of photobioreactors for cultivation of the red microalgae Porphyridium sp*, J. Chem. Technol. Biotechnol., 75, p. 1119, 2000;
34. Zhang Xu, Zhou Baicheng, Zhang Yiping, Cai Zhaoling, Cong Wei, Ouyang Fan, *A simple and low-cost airlift photobioreactor for microalgal mass culture*, Biotechnology Letters 24, p. 1767, 2002;
35. Yusuf Chisti, *Biodiesel from microalgae*, Biotechnol. Advances, 25, p. 294, 2007;
36. Bullen R.A., Arnot T.C., Lakeman J.B., Walsh F.C., *Biofuel cells and their development*, Biosensors and Bioelectronics, 21, p. 2015, 2006;
37. Merchuk J., Wu X., *A model integrating dynamics in photosynthesis and photoinhibition processes*, Chem. Eng. Sci., 56, p. 2527, 2001;

38. Iris Perner-Nochta, Clemens Posten, *Simulations of light intensity variation in photobioreactors*, J. Biotechnol., 131, p. 276, 2007;
39. Pre'zelin B., *Light reactions in photosynthesis*, Can. J. Fish. Aquat. Sci., 210, p. 1, 1981;
40. Fasham M., Platt T., *Photosynthetic response of phytoplankton to light: a physiological model*, Proc. R. Soc. Lond., Biol. Sci. B, 219, p. 355, 1983;
41. Papadakis I.A., Kotzabasis K., Lika K., *A cell-based model for the photoacclimation and CO₂-acclimation of the photosynthetic apparatus*, Biochimica et Biophysica Acta, 1708, p. 250, 2005;
42. Yegani R., Yoshimura S., Moriya K., Katsuda T., Katoh S., *Improvement of Growth Stability of Photosynthetic Bacterium Rhodospirillum rubrum*, J. Biosci. Bioeng., 100(6), p. 672, 2005;
43. **Popova P.**, Chr. Boyadjiev, On the red microalgae growth kinetics modeling, Proceedings of 11th Workshop on "Transport Phenomena in Two-Phase Flow", Bulgaria, Sunny Beach, Sept.1-5, 2006, 107-115;
44. **Popova P.**, Boyadjiev Chr., About microalgae growth kinetics modeling, Chemical and Biochemical Engineering Quarterly, 22 (4), pp. 491-497, 2008;
45. Krichnavaruk S., Loataweesup W., Powtongsookb S., Pavasant P., *Optimal growth conditions and the cultivation of Chaetoceros calcitrans in airlift photobioreactor*, Chem. Eng. J., 105, p. 91, 2005;
46. Boyadjiev Chr., *On the modeling of an airlift reactor*, Int. J. Heat Mass Transfer, 49, p.2053, 2006;
47. Jones R., Speer H., *Study on the growth of the red algae Porphyridium cruentum*, Physiol.Plant., 16, p. 636,1963;
48. Merchuk J., Ronen M., Giris S., Arad Sh., *Light-dark cycles in the growth of the red microalgae*, Biotechnol.Bioeng., 59, p. 705,1998;
49. Божоров Е., Висша математика II, Техника, София, 1961;
50. Dimitrova E., Boyadjiev Chr., *An iterative method for model parameter identification. 3. Regression models*, , In: Proceeding, 8th Workshop on Transport Phenomena in Two-Phase Flow, Sunny Beach, Bulgaria, p.133, 2003;
51. Prokop A., Erickson L., *Photobioreactors in Bioreactor System Design*, Ed by Asenjo JA and Merchuk JC, Marcel Decker, NY, 1994;

Публикации и доклади с участието на докторанта

Публикации:

1. **Р. Попова**, Boyadjiev Chr., Hierarchical approach for parameter identification of multiparameter models, *Biochemical Engineering Journal*, 39, pp. 397–402, 2008;
2. **Р. Попова**, Boyadjiev Chr., About microalgae growth kinetics modeling, *Chemical and Biochemical Engineering Quarterly*, 22 (4), pp. 491-497, 2008;
3. M. Doichinova, **Р. Попова**, Chr. Boyadjiev, Mass Transfer in counter-current flows, *Transactions of Academenergo*, 4, pp. 4-22, 2010;

Доклади и постери:

1. **Р. Попова**, Chr. Boyadjiev, On the regularization of the parameter identification problems, Proceedings of 9th Workshop on Transport Phenomena in Two-Phase Flow, Bulgaria, Borovets, August 27-Sept. 1, 145-151, 2004 (доклад);
2. **Р. Попова**, Chr. Boyadjiev, “On the Modeling of Fermentation Systems”, Proceedings of 10th Workshop on “Transport Phenomena in Two-Phase Flow”, Bulgaria, Sunny Beach, Sept.10-15, 149-158, 2005 (доклад);
3. **Р. Попова**, Chr. Boyadjiev, On the red microalgae growth kinetics modeling, Proceedings of 11th Workshop on “Transport Phenomena in Two-Phase Flow”, Bulgaria, Sunny Beach, Sept.1-5, 107-115, 2006 (доклад);
4. Yu. Aristov, I. Mezentssev, V. Mukhin, Chr. Boyadjiev, M. Doichinova, **Р. Попова**, New approach to regenerate heat and moisture in a ventilation system: Experiment, Proceedings of 11th Workshop on “Transport Phenomena in Two-Phase Flow”, Bulgaria, Sunny Beach, Sept.1-5, 77-85, 2006;
5. Chr. Boyadjiev, M. Doichinova, **Р. Попова**, Yu. Aristov, New approach to regenerate heat and moisture in a ventilation system: Modeling, Proceedings of 11th Workshop on “Transport Phenomena in Two-Phase Flow”, Bulgaria, Sunny Beach, Sept.1-5, 85-93, 2006;
6. **Р. Попова**, Chr. Boyadjiev, Mathematical modeling of moisture adsorption in a packing bed, Proceedings of 12th Workshop on Transporter Phenomena in Tow-Phase Flow, 219-226p., Sunny Beach, sept.13-18, 2008 (доклад);

7. **P. Popova**, Chr. Boyadjiev, Diffusion models and scale-up, Сборник докладов VII Всероссийская конференция с международным участием “Горение твердого топлива”, Част 1, 129-134р., Новосибирск, 10-13 ноября 2009 (доклад);
8. **P. Popova**, Chr. Boyadjiev, On the model parameter identification of engineering processes, Proceedings, 14th Workshop on Transporter Phenomena in Two-Phase Flow, Bansko Resort, Bulgaria, p. 89, 2010 (доклад);
9. **P. Popova**, Chr. Boyadjiev, “On the modelling of moisture adsorption in a packed bed”, 12-th International symposium Materials, Methods and Technologies, 11-14 June 2010, Sunny beach, Bulgaria, p. 105, 2010 (постер).