

连续搅拌反应器中自催化化学反应的同步与控制*

李 勇 张晓芳 毕勤胜†

(江苏大学理学院, 镇江 212013)

(2008 年 1 月 9 日收到, 2008 年 4 月 21 日收到修改稿)

讨论了由两个连续搅拌反应器组成的化学反应体系的同步问题. 基于 Lyapunov 稳定性理论, 提出了设计控制函数的方法, 分别探讨了入料溶液的流速恒定和存在周期微扰两种情况下使反应实现同步的耦合强度范围. 用数值模拟验证了方法的有效性. 结果表明该方法不仅适用于自治系统, 同时也适用于具有周期扰动的非自治系统.

关键词: 同步与控制, 化学反应, 连续搅拌反应器, 周期扰动

PACC: 0545

1. 引 言

混沌研究一直是国内外研究的前沿课题之一^[1,2], 而混沌的同步与控制由于其在物理、通信、信息科学、医学、化学等领域中具有很大的应用潜力和发展前途, 引起了人们的广泛关注^[3-6]. 在化学工程中, 对于化学反应同步与控制问题的研究能够显著地提高反应功效及选择性, 还可以通过把化学反应的设计和控制在基本元素, 使用最新的分岔、混沌和分形等理论工具深化对化学反应的研究.

由于连续搅拌反应器(CSTR)在反应过程中被广泛应用, 其复杂行为直接影响到反应的最终结果, 因此, 探讨 CSTR 体系中各种反应过程具有重要的意义^[7-9]. 近年来, 国内外关于化学反应中同步问题的研究已有一些报道, 如 Abashar 和 Judd^[10]揭示了两个耦合 CSTR 反应体系中的同步现象. 以往的研究多是对两个 CSTR 体系的直接耦合, 使用方法单一, 且主要通过数值模拟进行分析, 而有关 CSTR 化学反应的同步与控制理论的研究尚不多见. 本文正是基于这样的背景, 从理论与数值模拟两方面分析 CSTR 中自催化化学反应的同步与控制.

2. 问题描述与数学模型

考虑 CSTR 体系中的三变量自催化反应过程,

其反应装置如图 1 所示, 整个反应体系由液体溶液及入料口、出料口和搅拌器等部件组成. 当溶液从入料口流入容器后, 由搅拌器加速各种溶液之间的反应, 最后由出料口流出反应后的混合液.

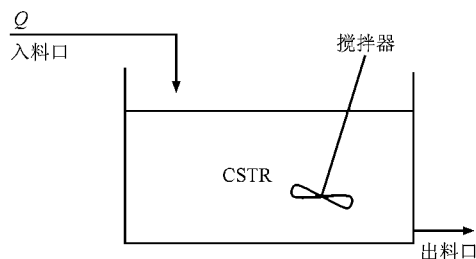


图 1 CSTR 装置示意图

根据 CSTR 化学反应模型, 我们采用 Lynch^[11]提出的自催化反应系统. 由于在实际的化学反应过程中, 很难实现长期的稳定输入, 有可能存在一定程度的扰动, 因此我们考虑入料溶液的流速 Q 存在扰动时对反应的影响, 并引入微幅周期函数来描述其扰动特性, 即 $Q[1 + \epsilon \cos(\omega t)]$, 其中 ϵ 表示该扰动的幅值. 该反应可以由无量纲微分方程组表示如下:

$$\frac{dx_A}{dt} = (1 - x_A)[1 + \epsilon \cos(\omega t)] - a_1 x_A x_B^2,$$

$$\frac{dx_B}{dt} = (1 - x_B)[1 + \epsilon \cos(\omega t)]$$

$$- a_3 x_B + \lambda(a_1 x_A + a_2 x_C)x_B^2,$$

* 国家自然科学基金(批准号 20476041)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: qbi@ujs.edu.cn

$$\frac{dx_C}{dt} = (\beta - x_C) [1 + \varepsilon \cos(\omega t)] - a_2 x_C x_B^2, \quad (1)$$

式中 x_A, x_B, x_C 分别表征 A, B, C 三种物质在反应过程中的无量纲浓度, γ 为入料溶液中 A 物质的浓度与 B 物质浓度之比, β 为入料溶液中 C 物质的浓度与 A 物质浓度之比, a_1, a_2, a_3 为无量纲参数, 其具体表达式见文献 [11].

上述方程组刻画了整个反应的演化过程, 其解对应于反应器中各成分的某种情况, 如平衡点对应反应过程中的定常态, 即反应器中各成分的质量及浓度保持不变, 而周期解则表示反应过程中各成分的浓度按照一定的频率周期性变化.

由于在工业上许多反应器实际上是由多个 CSTR 组成的系统, 因此有必要考虑多个 CSTR 之间的相互影响^[10], 并设计有效的控制装置控制反应器中的反应, 使各个 CSTR 中的反应同步. 本文考虑由两个完全相同的 CSTR 组成的反应器, 它们由一个控制装置连接, 如图 2 所示.

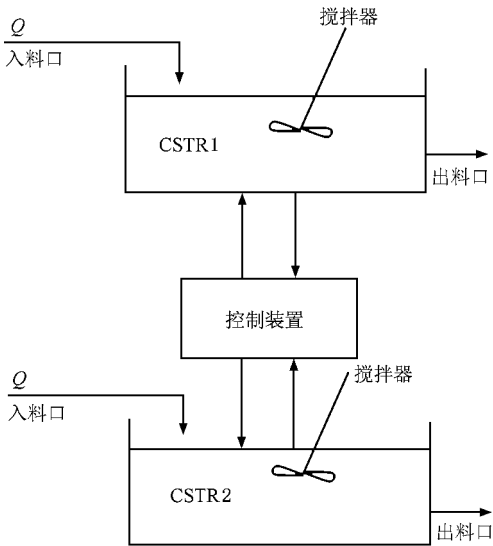


图 2 两个 CSTR 组成的反应器装置示意图

我们用控制函数 u_{xi}, u_{yi} ($i = A, B, C$) 表示控制装置对单个 CSTR 反应的影响, 则耦合反应系统可以表示为

$$\frac{dx_A}{dt} = (1 - x_A) [1 + \varepsilon \cos(\omega t)] - a_1 x_A x_B^2 + u_{xA},$$

$$\frac{dx_B}{dt} = (1 - x_B) [1 + \varepsilon \cos(\omega t)]$$

$$- a_3 x_B + \chi (a_1 x_A + a_2 x_C) x_B^2 + u_{xB},$$

$$\frac{dx_C}{dt} = (\beta - x_C) [1 + \varepsilon \cos(\omega t)] - a_2 x_C x_B^2 + u_{xC}; \quad (2)$$

$$\frac{dx_A}{dt} = (1 - y_A) [1 + \varepsilon \cos(\omega t)] - a_1 y_A y_B^2 + u_{yA},$$

$$\frac{dy_B}{dt} = (1 - y_B) [1 + \varepsilon \cos(\omega t)] - a_3 y_B + \chi (a_1 y_A + a_2 y_C) y_B^2 + u_{yB},$$

$$\frac{dy_C}{dt} = (\beta - y_C) [1 + \varepsilon \cos(\omega t)] - a_2 y_C y_B^2 + u_{yC}. \quad (3)$$

系统 (2) 和 (3) 之间的同步误差为

$$e(t) = x(t) - y(t).$$

我们的目标是设计适当的控制函数, 使具有不同初始浓度的两个 CSTR 满足

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \|e\| = \lim_{t \rightarrow \infty} \|x(t) - y(t)\| = 0,$$

从而使反应过程达到完全同步.

3. 控制函数设计

考虑一般连续混沌系统^[12]

$$\dot{x}(t) = F(x(t), t), \quad (4)$$

式中 $x(t) \in R^n$ 为 n 维状态矢量. 将系统 (4) 分离为

$$\dot{x}(t) = Kx(t) - M(x(t), t), \quad (5)$$

式中 $Kx(t)$ 为 $F(x(t), t)$ 的线性部分, 要求 K 为满秩的常数矩阵, 且其所有的特征根均为负值, $-M(x(t), t) = F(x(t), t) - Kx(t)$ 为 $F(x(t), t)$ 的非线性部分. 利用两个系统 $M(x(t), t)$ 的差, 通过两个系统的耦合构造如下两个新的系统:

$$\dot{x}_1(t) = Kx_1(t) - M(x_1(t), t) + U_1, \quad (6)$$

$$\dot{x}_2(t) = Kx_2(t) - M(x_2(t), t) + U_2, \quad (7)$$

式中

$$U_1 = \alpha [M(x_1(t), t) - M(x_2(t), t)],$$

$$U_2 = \delta [M(x_2(t), t) - M(x_1(t), t)]$$

为控制函数, 其中 α 和 δ 为每个系统的耦合强度因子. 当系统 (6) 和 (7) 实现完全同步时, $x_1(t) = x_2(t)$. 两系统相减得到系统间的同步误差 $e(t)$, 误差方程可以表示为

$$e(t) = \left[K + (\alpha + \delta - 1) \frac{\partial M}{\partial x} \right] e(t). \quad (8)$$

根据同步的定义,可以将混沌系统的同步问题转化为误差系统在原点的渐近稳定性问题.由(8)式可知,当 $\alpha + \delta = 1$ 时, $e(t)$ 的零点为平衡点.由于要求 K 的所有特征值均为负值,根据线性系统稳定性准则,同步误差系统的零点为渐近稳定,满足 $e \rightarrow 0 (t \rightarrow \infty)$,此时即实现系统(6)和(7)的状态矢量的完全同步.当 $\alpha + \delta \neq 1$ 时,则可以通过误差方程的 Lyapunov 指数或分岔图来确定使两系统达到完全同步的耦合参数范围.因此,我们可以通过设计适当的控制函数 U_1, U_2 使两系统达到完全同步.

由于系统(4)为一般情况,因此该方法可以用来设计系统(2)和(3)的控制函数,将系统(2)右段分离成 $Kx(t)$ 和 $-M(x(t), t)$ 两部分.

$$\dot{e} = \begin{bmatrix} (\alpha \phi + a_1 x_B^2) - 1 & 2\theta a_1 x_A x_B & 0 \\ -\theta \gamma a_1 x_B^2 & a_1 - [\alpha \phi + 2\gamma x_B (a_1 x_A + a_2 x_C)] - 1 & -\theta \gamma a_2 x_B^2 \\ 0 & 2\theta a_2 x_C x_B & (\alpha \phi + a_2 x_B^2) - 1 \end{bmatrix} e,$$

式中

$$\begin{aligned} \theta &= 2\alpha - 1, \\ \phi &= \varepsilon \cos(\omega t). \end{aligned}$$

根据理论分析可以得到,当 $\alpha = 0.5$ 时,不同初始浓度的两个 CSTR 中各成分浓度能够达到相同,而当 $\alpha \neq 0.5$ 时,可以通过计算 Lyapunov 指数或分岔图来确定使耦合系统达到完全同步的耦合参数范围.我们就可以根据耦合参数范围构造控制函数,从而可以设计适当的控制装置实现两个 CSTR 中的反应同步.

4. 数值模拟

下面我们用数值模拟来验证上述方法的可行性.选取系统参数 $\beta = 2.85, a_1 = 18000, a_2 = 400, a_3 = 80$,考虑入料溶液的流速恒定和流速存在扰动两种较为典型的情况.

4.1. 入料溶液的流速恒定

如果入料溶液的流速保持不变,即 $\varepsilon = 0$,当 $\gamma = 1.47$ 时系统(1)处于混沌状态,如图3所示.

对于耦合系统,当耦合强度 $\alpha = 0.5$ 时,由于此时 $a_1 = 18000 > -1$,故矩阵 K 的所有特征值均为负

$$K = \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 - a_3 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix},$$

$M(x(t), t)$

$$= \begin{bmatrix} -1 - (1 - x_A) \varepsilon \cos(\omega t) + a_1 x_A x_B^2 \\ -1 - (1 - x_B) \varepsilon \cos(\omega t) - \gamma (a_1 x_A x_B^2 + a_2 x_C x_B^2) \\ -\beta - (\beta - x_C) \varepsilon \cos(\omega t) + a_2 x_C x_B^2 \end{bmatrix}.$$

矩阵 K 的特征值为 $\lambda_1 = -1, \lambda_2 = -1 - a_3, \lambda_3 = -1$,只要满足 $a_3 > -1$, K 的所有特征值均为负实数.考虑反应器之间的影响是相同的,即 $\alpha = \delta$,按照系统(6)和(7),我们可以得到耦合 CSTR 化学反应系统的方程.

由(8)式得到同步误差的微分方程

值,此时误差系统的零点渐近稳定,表明具有不同初始浓度的两个 CSTR 中各成分的浓度能够达到一致.给定两个系统的初值 $x_A = x_B = x_C = 0.01, y_A = y_B = y_C = 0.001$,图4给出了耦合系统的同步结果.

从图4可以看出,耦合系统实现了完全同步,同步误差 $e = [e_A, e_B, e_C]^T$ 在很短的时间内快速收敛于零,数值结果验证了理论分析.同时还发现,两个 CSTR 中各成分的浓度达到一致的时间是不同的, B 反应很快实现同步,而 A 反应和 C 反应达到同步的时间却相对较长.

当 $\alpha \neq 0.5$ 时,我们通过计算误差系统的分岔图来确定使耦合系统达到完全同步的耦合参数范围,图5给出了不同耦合强度对应的同步误差.

从图5可以看出,当 $\alpha \in [0, 0.0515]$ 时,耦合系统的同步误差不为零,不能实现状态的完全同步,而当 $\alpha > 0.0515$ 时,对应的分岔图为空白,表明在此参数区域内同步状态具有稳定性,两个 CSTR 中各成分的浓度相同.进一步的数值分析还表明,当 $\alpha > 0.5082$ 时,计算程序显示溢出,说明此时耦合系统的同步误差突然由零变得很大.为了更清楚地反映系统的动力学特征,图6和图7分别给出了反应没有实现完全同步和实现完全同步时误差系统的相图和时间历程图,其中图6(a)和

(d)表明耦合系统实现了相位同步,其产生机理将另文详细阐述.

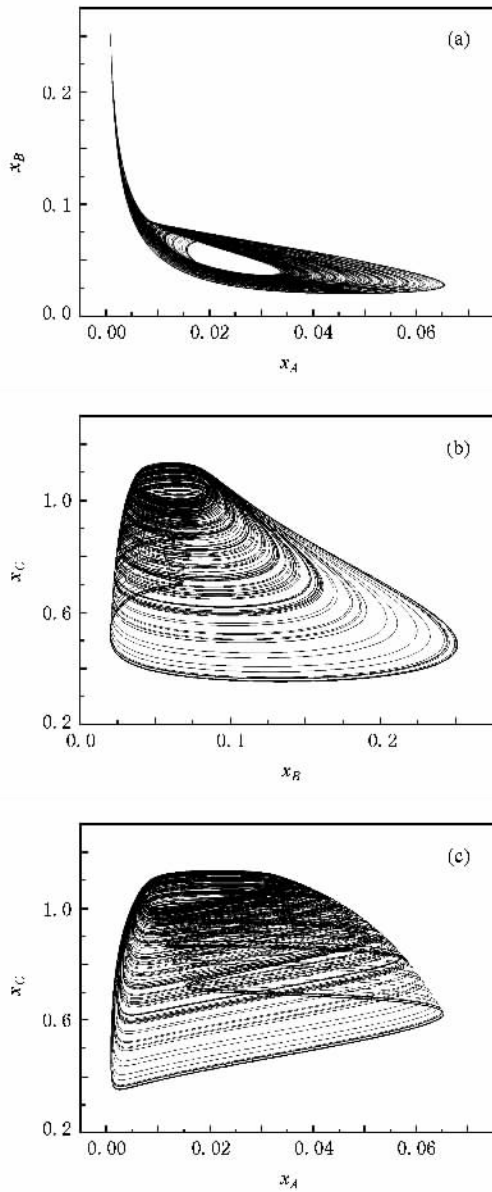


图3 $\epsilon = 0$ 时系统1的相图 (a) x_A-x_B , (b) x_B-x_C (c) x_A-x_C

从上述分析可以得出,当耦合强度 $\alpha \in [0.0516, 0.5082]$ 时,耦合系统能实现完全同步,两个 CSTR 在初始浓度不同的情况下各成分浓度能够达到相同.因此,在这个参数范围内我们可以设计适当的控制函数,从而使两个 CSTR 中的反应一致.

4.2. 入料溶液的流速存在扰动

由于在实际的化学反应过程中,入料溶液的流速有可能存在一定程度的扰动,设定扰动的幅值 $\epsilon = 0.2$,

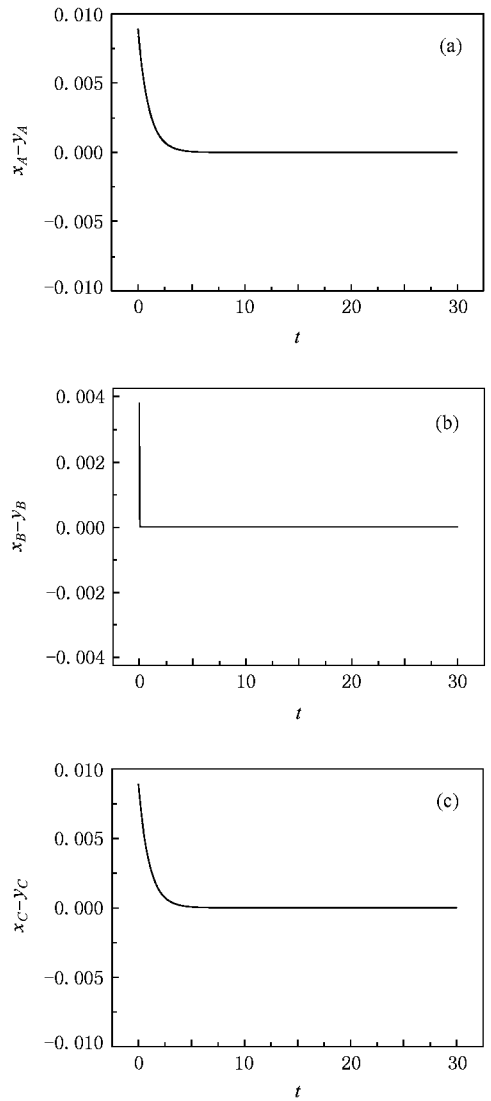


图4 $\alpha = 0.5$ 时同步误差的时间历程图 (a) $x_A - y_A$, (b) $x_B - y_B$, (c) $x_C - y_C$

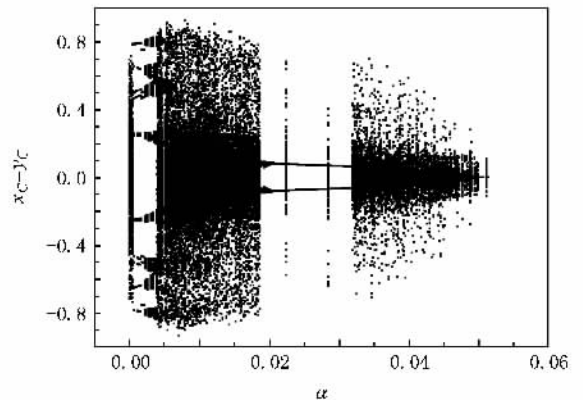


图5 入料溶液的流速恒定时同步误差随 α 变化的分岔图

当 $\gamma = 1.1$ 时系统1处于混沌状态,如图8所示.

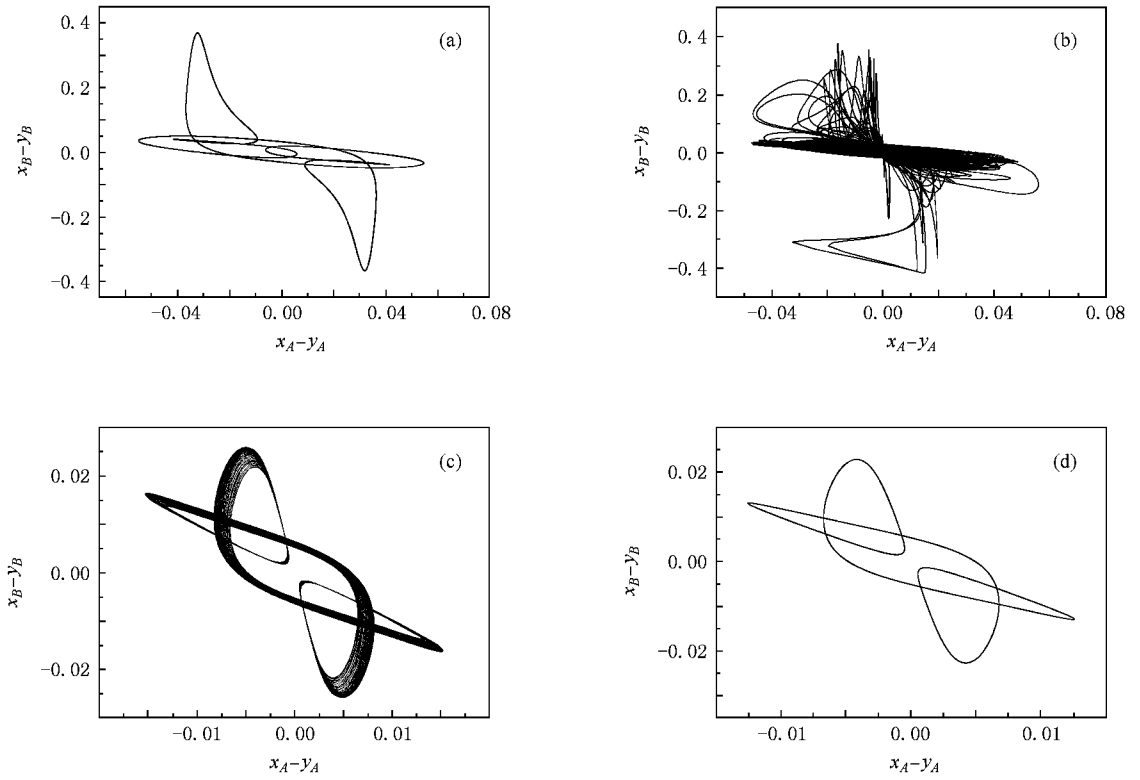


图 6 反应没有实现完全同步时误差系统的相图 (a) $\alpha = 0.002$ (b) $\alpha = 0.01$ (c) $\alpha = 0.02$ (d) $\alpha = 0.025$

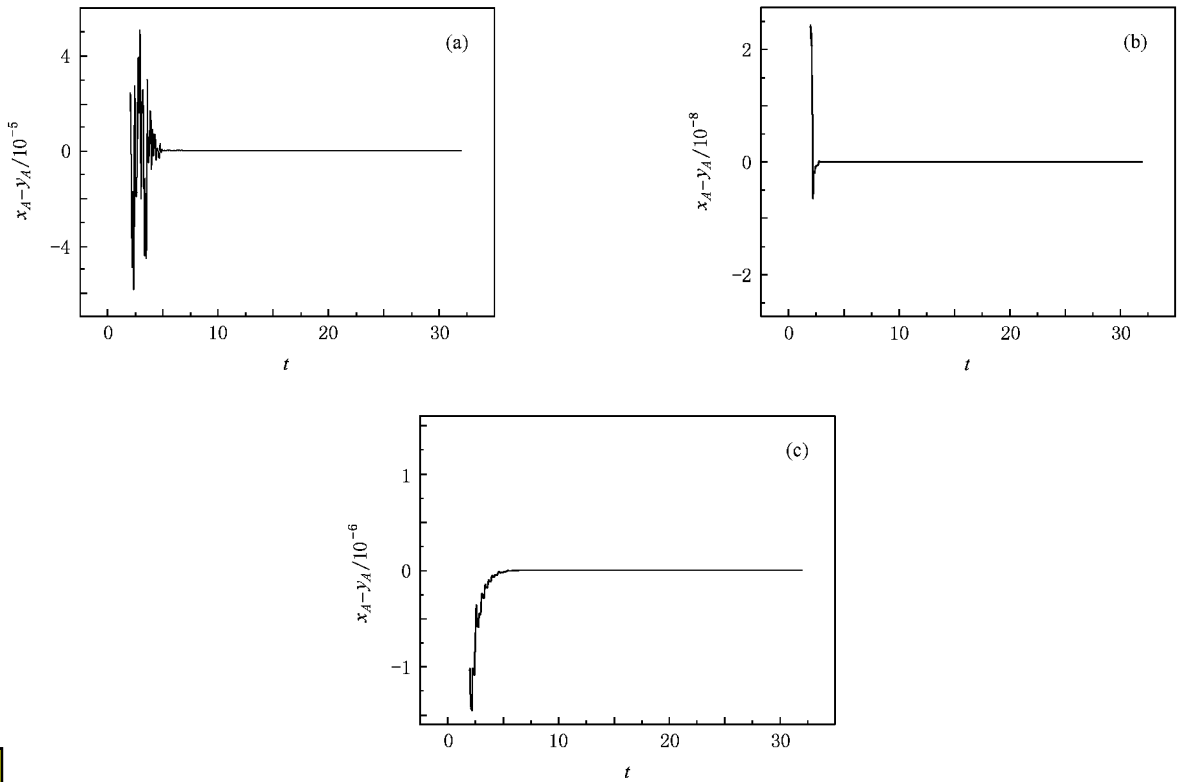


图 7 入料溶液的流速恒定时同步误差的时间历程图 (a) $\alpha = 0.08$ (b) $\alpha = 0.2$ (c) $\alpha = 0.4$

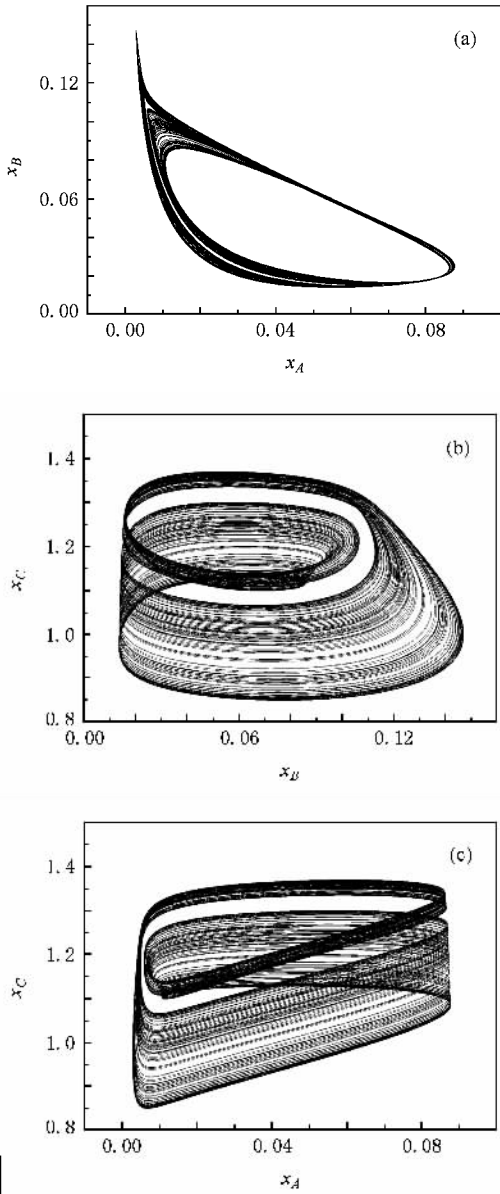


图 8 $\epsilon = 0.2$ 时系统 1 的相图 (a) x_A-x_B , (b) x_B-x_C (c) x_A-x_C

对于耦合系统,当耦合强度 $\alpha = 0.5$ 时,给定与流速恒定时相同的初值,图 9 给出了入料溶液的流速存在扰动时的同步结果.当 $\alpha \neq 0.5$ 时,我们同样可以利用误差系统的分岔图确定同步参数区域,如图 10 所示.

从分岔图可以看出,由于入料流速存在扰动使得系统的同步比没有扰动时提前发生,耦合系统的同步误差在 $\alpha = 0.02$ 时开始为零,系统存在很大的同步参数区域,直到 $\alpha > 0.519$ 时程序显示溢出.这表明对于入料溶液的流速存在扰动的反应系统,当耦合强度 $\alpha \in [0.02, 0.519]$ 时反应能实现完全同步.图 11 给出了反应实现完全同步时误差系统的时

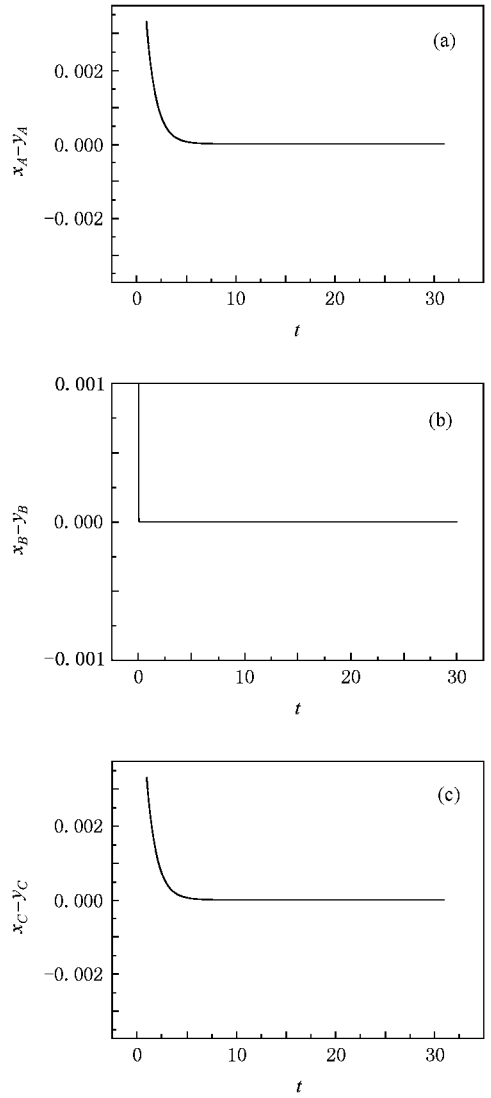


图 9 $\alpha = 0.5$ 时同步误差的时间历程图(入料溶液的流速存在扰动) (a) $x_A - y_A$, (b) $x_B - y_B$, (c) $x_C - y_C$

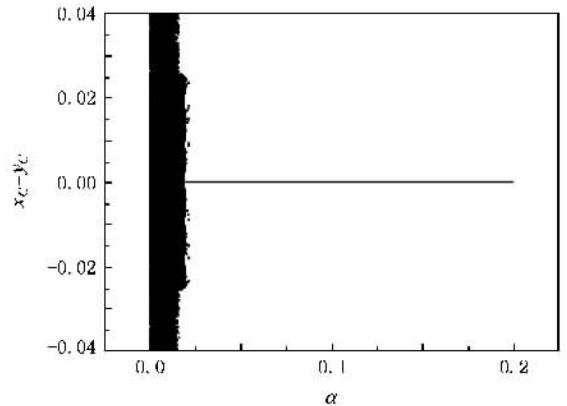


图 10 入料溶液的流速存在扰动时同步误差随 α 变化的分岔图

间历程图.

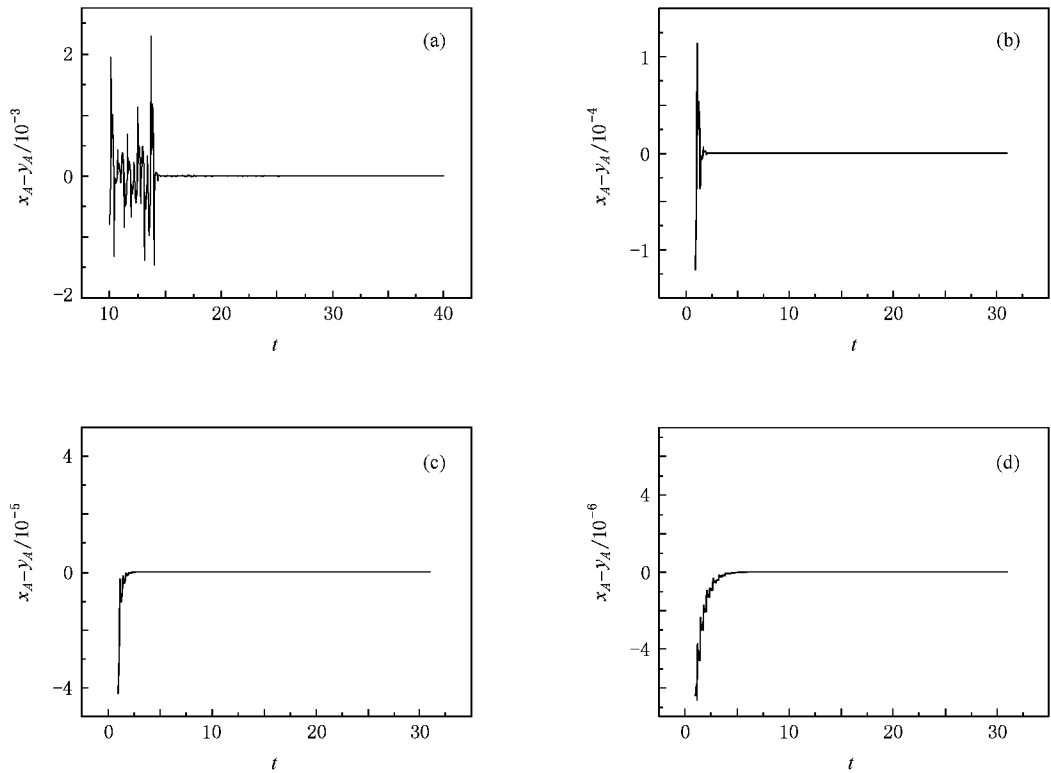


图 11 入料溶液的流速存在扰动时同步误差的时间历程图 (a) $\alpha = 0.02$ (b) $\alpha = 0.1$ (c) $\alpha = 0.2$ (d) $\alpha = 0.4$

5. 结 论

在由两个 CSTR 组成的自催化反应系统中,考虑实际反应中入料溶液的流速存在扰动. 依据 Lyapunov 稳定性理论,通过构造适当的控制函数,实现了两个初始浓度不同的 CSTR 反应同步. 用数值

方法分析了流速恒定和存在扰动两种情况下的同步状态,确定了实现反应同步的耦合参数范围,验证了所提出方法的有效性. 研究表明,该方法不但适用于自治系统,对非自治系统也同样适用. 这些结果对设计符合实际需要的反应控制装置,从而对反应过程进行控制有一定的指导意义.

- [1] Yue L J, Shen K 2005 *Chin. Phys.* **14** 1760
- [2] Wang X Y, Wang M J 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5136 (in Chinese) [王兴元、王明军 2007 物理学报 **56** 5136]
- [3] Yu H J, Liu Y Z 2004 *Phys. Lett. E* **69** 066203
- [4] Hao J H, Li W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3491 (in Chinese) [郝建红、李 伟 2005 物理学报 **54** 3491]
- [5] Wang F Q, Liu C X 2006 *Chin. Phys.* **15** 1971
- [6] Ma J, Liao G H, Mo X H, Li W X, Zhang P W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 5585 (in Chinese) [马 军、廖高华、莫晓华、李维学、张平伟 2005 物理学报 **54** 5585]
- [7] Matthew L D, Igor S 2004 *Chem. Eng. Sci.* **59** 139
- [8] Sriram K 2006 *Chaos Solitons Fract.* **28** 1055
- [9] Gary P, Scott S K 1983 *Chem. Eng. Sci.* **38** 29
- [10] Abashar M E E, Judd M R 1998 *Chem. Eng. Sci.* **53** 3741
- [11] Lynch D T 1992 *Chem. Eng. Sci.* **47** 347
- [12] Yu H J, Liu Y Z 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3029 (in Chinese) [于洪洁、刘延柱 2005 物理学报 **54** 3029]

Synchronization and control of autocatalytic chemical reaction in continuous stirring tank reactor^{*}

Li Yong Zhang Xiao-Fang Bi Qin-Sheng[†]

(Faculty of Science , Jiangsu University , Zhenjiang 212013 , China)

(Received 9 January 2008 ; revised manuscript received 21 April 2008)

Abstract

The synchronization problem for a chemical reaction system composed of two continuous stirring tank reactor is explored. Based on Lyapunov stability theory , a new method is proposed to design the controlling function. The range of the coupling strength to realize the synchronization between the two chemical systems is investigated both for the case with static velocity and with periodically disturbed velocity of the input material. Numerical simulations are then performed to demonstrate the effectiveness of the proposed scheme , which show that the method is suitable for both the autonomous system and the non-autonomous system with periodic perturbation.

Keywords : synchronization and control , chemical reaction , continuous stirring tank reactor , periodic perturbation

PACC : 0545

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 20476041).

[†] Corresponding author. E-mail : qbi@ujs.edu.cn