

Slovenská technická univerzita v Bratislave
Fakulta chemickej a potravinárskej technológie
Ústav informatizácie, automatizácie a matematiky



Optimálna prevádzka membránových separačných procesov

Habilitačná práca

Odbor: 5.2.14 Automatizácia

Bratislava, 2017

Ing. Radoslav Paulen, PhD.

Podakovanie

Touto cestou by som chcel vyjadriť vďaku všetkým ľuďom, ktorí aktívne prispeli k tomu, že predkladaná habilitačná práca uzrela svetlo sveta. V prvom rade by som chcel poďakovať svojej rodine, ktorej podpora, najmä počas mojich viacerých dlhodobých pobytov v zahraničí, pre mňa predstavovala veľkú motiváciu a dodávala mi prepotrebnú energiu a chuť k práci.

Nesporne najväčšiu zásluhu na mojom akademickom raste má prof. Miroslav Fikar, ktorý bol a je skvelým mentorom, učiteľom a kolegom, obetoval mi veľa času, trpezlivo so mnou diskutoval a vždy našiel správny spôsob ako ma motivovať k sebazdokonaľovaniu.

Vo svojej doterajšej práci som dokázal skutočne plnohodnotne a dlhodobejšie spolupracovať s niekoľkými ľuďmi, ktorí si zaslúžia na tomto mieste špeciálnu zmienku. Uvádzaní v abecednom poradí, keďže rebríček kvality ich prínosov je pre mňa prakticky nemožné určiť, Benoît Chachuat, Anwesh Reddy Gottu Mukkula, Martin Jelemenský, Zoltán Kovács, Sergio Lucia, Shaghayegh Nazari, Sakthi Thangavel a Simon Wenzel sú tí, ktorým chcem týmto vysloviť čo najsrdečnejšiu vďaku za bohatú a pestrú spoluprácu v každom smere. Ďakujem im za ohromnú dávku kolegiality a priateľstva.

Veľkú vďačnosť cítim aj k oponentom tejto habilitačnej práce, ktorí si našli čas na jej prečítanie a posúdenie.

Na poslednom mieste avšak v neposlednom rade chcem poďakovať všetkým kolegom a študentom z pracovísk, na ktorých som pôsobil kratší alebo dlhší čas. Všetci veľmi pozitívne prispeli k tomu ako sa pozerám na svet, akým som človekom a akým som výskumníkom. Vďaka patrí kolegom z Ústavu informatizácie, automatizácie a matematiky FCHPT STU v Bratislave, z Process Dynamics and Operations Group, Department of Biochemical and Chemical Engineering, Technische Universität Dortmund, z OMEGA group, Department of Chemical Engineering, Imperial College London, z ODCA group, Ecole Nationale Supérieure des Industries Chimiques, Université de Lorraine, Nancy, a zo Systems group, Department of Chemical Engineering, NTNU, Trondheim. Zvlášťne miesto v tomto dlhom zozname patrí vedúcim spomenutých skupín, prof. Sebastian Engell, prof. Sigurd Skogestad, prof. Abderrazak Latifi, s ktorými mi bolo veľkou ctou spolupracovať.

Radoslav Paulen
Bratislava, 2017

Obsah

1 Úvod	1
1.1 Prínosy práce	2
1.2 Štruktúra tejto práce	3
2 Diafiltrácia	5
2.1 Opis procesu	5
2.2 Matematický model procesu	6
2.3 Formulácia problému optimálnej prevádzky	6
3 Optimálna prevádzka vsádzkovej diafiltrácie	9
3.1 Problém minimalizácie času prevádzky	10
3.2 Problém minimalizácie množstva pridaného rozpúšťadla	12
3.3 Optimálne riadenie pre špeciálne prípady	12
3.4 Optimálne riadenie pre všeobecné prípady	13
4 Rozšírenia optimálnej prevádzky diafiltrácie	15
4.1 Ekonomická prevádzka vsádzkovej diafiltrácie	15
4.2 Časovo-optimálna prevádzka viaczložkovej diafiltrácie	19
5 Vsádzková diafiltrácia so zanášaním	21
5.1 Modelovanie zanášania membrány	21
5.2 Časovo-optimálna prevádzka diafiltrácie so zanášaním	22
5.3 Adaptívna časovo-optimálna prevádzka diafiltrácie	22
6 Závěry	25
Literatúra	27
Curriculum Vitae	31
Priložené publikované práce	33
Paulen, R. – Foley, G. – Fikar, M. – Kovacs, Z. – Czermak, P.: Minimizing the process time for ultrafiltration/diafiltration under gel polarization conditions. Journal of Membrane Science, č. 1-2, zv. 380, str. 148–154, 2011.	

- Paulen, R. – Fikar, M. – Kovacs, Z. – Czermak, P.: Process optimization of diafiltration with time-dependent water adding for albumin production. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, č. 8, zv. 50, str. 815–821, 2011.
- Paulen, R. – Fikar, M. – Foley, G. – Kovacs, Z. – Czermak, P.: Optimal feeding strategy of diafiltration buffer in batch membrane processes. *Journal of Membrane Science*, zv. 411-412, str. 160–172, 2012.
- Paulen, R. – Jelemenský, M. – Fikar, M. – Kovacs, Z.: Optimal balancing of temporal and buffer costs for ultrafiltration/diafiltration processes under limiting flux conditions. *Journal of Membrane Science*, zv. 444, str. 87–95, 2013.
- Paulen, R. – Jelemenský, M. – Kovacs, Z. – Fikar, M.: Economically optimal batch diafiltration via analytical multi-objective optimal control. *Journal of Process Control*, zv. 28, str. 73–82, 2015.
- Paulen, R. – Fikar, M.: *Optimal Operation of Batch Membrane Processes*, Springer, 2016.
- Jelemenský, M. – Paulen, R. – Fikar, M. – Kovacs, Z.: Time-Optimal Operation of Multi-Component Batch Diafiltration. *Computers & Chemical Engineering*, zv. 83, str. 131–138, 2015.
- Jelemenský, M. – Sharma, A. – Paulen, R. – Fikar, M.: Time-optimal control of diafiltration processes in the presence of membrane fouling. *Computers & Chemical Engineering*, zv. 91, str. 343–351, 2016.
- Jelemenský, M. – Pakšiová, D. – Paulen, R. – Latifi, M. A. – Fikar, M.: Combined Estimation and Optimal Control of Batch Membrane Processes. *Journal of Processes*, č. 4, zv. 4, 2016.

Zoznam obrázkov

2.1	Schéma zovšeobecneného vsádzkového diafiltračného procesu.	6
2.2	Tradičné prístupy k prevádzke vsádzkovej diafiltrácie.	7
4.1	Optimálna prevádzka diafiltrácie pri limitujúcom prietoku v koncentračnom diagrame s počiatočným bodom (o) a dvoma možnými koncovými bodmi (×).	17
4.2	Optimálne trajektórie riadiacej veličiny pre diafiltráciu pri limitujúcom prietoku s minimálnym časom prevádzky (minimum time), s minimálnou spotrebou rozpúšťadla (minimum diluant), a ekonomickou účelovou funkciou (multi-objective optimal).	18
4.3	Pareto front pre optimálnu prevádzku diafiltrácie pri limitujúcom prietoku s vyznačenými bodmi pre minimálny čas prevádzky (minimum time), minimálnu spotrebu rozpúšťadla (minimum diluant), a ekonomickú účelovú funkciu (multi-objective optimal).	18
5.1	Grafická reprezentácia štyroch štandardných mechanizmov zanášania.	21

Kapitola 1

Úvod

Predkladaná habilitačná práca pojednáva o optimálnej prevádzke membránových separačných procesov, ktoré predstavujú jednu z najmladších vývojových vetiev separačných (tzv. *downstream*) procesov. Tieto procesy nachádzajú široké uplatnenie v chemickom a biochemickom priemysle. Membránové procesy, ako membránová destilácia, pervaporácia, membránová filtrácia, diafiltrácia a procesy využívajúce membránové reaktory získavajú zvýšenú pozornosť najmä vďaka menším energetickým nárokom a väčšej efektívnosti dosiahnutej separácie v porovnaní s inými konvenčnejšími procesmi. Avšak tieto procesy nevzbudili doposiaľ príliš veľký záujem komunity zaoberajúcej sa procesnou optimalizáciou či procesným riadením. Z tohto dôvodu vykazujú membránové procesy slubný potenciál na rozvoj k dosiahnutiu prevádzkovej excelentnosti.

Hoci odborná literatúra o optimálnej prevádzke membránových procesov nie je veľmi bohatá, objavujú sa najmä v posledných rokoch viaceré štúdie, ktoré riešia optimalizačné problémy spojené práve s prevádzkou membránových procesov. Tieto študujú optimalizáciu prevádzky membránových reaktorov (Odriozola a kol., 2017; Parvasi a kol., 2009; Rahimpour a Behjati, 2009), iných výrobných procesov využívajúcich membrány (Bui a kol., 2010; Kuhn a kol., 2009), membránových separačných procesov (Fikar a kol., 2010; Takači a kol., 2009) ako aj optimalizáciu čistenia membrán v prítomnosti zanášania (Blankert a kol., 2006; Zondervan a Roffel, 2008). V tejto práci sa zameriame na nájdenie všeobecnej optimálnej prevádzky procesu diafiltrácie, ktorá predstavuje špecifickú triedu membránových separačných procesov.

Princíp membránovej filtrácie roztokov spočíva v použití polopriepustnej prepážky, t.j. membrány, ktorá dokáže účinne oddeliť látky s rôznou veľkosťou častíc, ak je roztok pritlačený vonkajšou silou (napr. tlakom alebo elektromagnetickým poľom) na jednu stranu membrány. Takto sa na jednej strane membrány ocitnú (prevažne) častice s menšou a na druhej strane (prevažne) častice s väčšou veľkosťou častíc (molekulovou hmotnosťou). Diafiltračný proces kombinuje dva možné spôsoby ako v roztoku zakoncentrovať látky s väčšou veľkosťou častíc, tzv. makrozložky, a ako zároveň vymyť z roztoku nečistoty, ktoré sú spravidla látkami s menšou veľkosťou častíc, tzv. mikrozložky. Tento proces môže byť vykonaný kontinuálne alebo diskontinuálne (vsádzkovo), pričom táto forma prevádzky je daná vlastnosťami spracovávaného roztoku ako aj ďalšími fyzikálnymi parametrami. V tejto práci sa budeme zaoberať vsádzkovou diafiltráciou, ktorá bude navyše vykonávaná tak, aby bol tlak na membráne konštantný. Toto je bežným spôsobom prevádzky, pri ktorej je možné zachovať určité vlastnosti membrány rovnaké počas celej doby trvania procesu. Pri takejto prevádzke vyvstane jediný

stupeň volnosti, a to prietok čistého rozpúšťadla, ktoré sa pridáva do oddelovaného roztoku s cieľom ovplyvňovania koncentrácie zložiek v roztoku, čo má dopad na separačnú účinnosť membrány.

1.1 Prínosy práce

Ako teda dosiahnuť spomínanú optimálnu prevádzku? Optimálna prevádzka môže zohľadňovať viaceré kritériá. Ak je cieľom výroby dosiahnutie maximálnej možnej kapacity, tak sa táto požiadavka dá zabezpečiť skrátením času, ktorý je potrebný na jednu vsádzku. Pri najkratšom možnom čase vsádzky teda pri časovo-optimálnej prevádzke vsádzkovej diafiltrácie je možné použiť jedno diafiltračné zariadenie na najväčší možný počet vsádzok za určitý časový horizont a takto dosiahnuť maximálnu kapacitu výroby. Tomuto problému sa venovalo niekoľko autorov. Získané riešenia sú buď analytického charakteru (Lutz, 1996; Ng a kol., 1976) aplikovateľné na úzku triedu diafiltračných procesov alebo numerického charakteru (Takači a kol., 2009) spravidla neumožňujúce prehľad fundamentálnych vlastností všeobecnej optimálnej prevádzky.

Ďalším relevantným cieľom berúc v úvahu výrobné trendy posledných rokov je zvýšenie efektivity procesu vzhľadom na vstupné náklady. Tento cieľ môže byť synergicky dosiahnutý časovo-optimálnou prevádzkou ak najväčšiu časť vstupných nákladov predstavuje elektrická energia potrebná na prevádzku čerpadiel či energia potrebná na výmenu tepla pre udržanie stanovenej teploty procesu (roztoku). Čím kratšie vsádzka trvá, tým menej energie bude potrebnej. Významným vstupným nákladom býva v praxi cena rozpúšťadla pridávaného do diafiltrovaného roztoku. Je teda rozumné a vhodné určiť ako bude realizovaná prevádzka, ktorej cieľom je vykonať jednu vsádzku pri použití čo najmenšieho množstva rozpúšťadla.

Rôzna situácia na ekonomickom trhu môže vyžadovať kompromis medzi časovo-optimálnym riadením a riadením s použitím minimálneho množstva rozpúšťadla a to kompromis v rôznej miere. Napríklad sa môže stať, že vplyv doby vsádzky a množstva použitého rozpúšťadla na cenu výroby môžu byť veľmi podobné. Tu sa dá optimálna prevádzka formulovať ako dvojúčelová, a teda taká, ktorá dosiahne ekonomicky najvýhodnejší kompromis medzi spomenutými dvoma cieľmi.

Okrem spomenutých existujú aj ďalšie možné formulácie optimálnej prevádzky diafiltrácie, ktoré nebudú v tejto práci explicitne spomenuté. Tieto boli ukázané v prácach Paulen a kol. (2015) a Paulen a Fikar (2016), ktoré sú prílohou tejto práce.

K najpálčivejším problémom membránovej filtrácie všeobecne patrí problém zanášania membrán. Zanášanie upcháva póry membrány (membránové kanály) a vedie k znižovaniu efektívneho prietoku cez membránu. Tým sa zároveň zvyšuje čas potrebný na filtráciu daného roztoku, čo vedie k ekonomickým stratám. Ako už bolo spomenuté, istý pokrok bol dosiahnutý v oblasti optimalizácie čistenia zanášajúcich sa (zanesených) membrán. Otázkou ostáva, či je možné použiť prevádzkové stupne volnosti na ovplyvnenie miery a rýchlosti zanášania, a to tak, aby výsledná prevádzka bola optimálna vzhľadom na vyššieuvedené kritériá. Ponúka sa aj pridružená otázka, či je možné určiť z údajov meraných počas priebehu diafiltračného procesu parametre matematického modelu zanášania, ktoré sú nevyhnutné na predpovedanie miery zanášania.

Vzhľadom na vyššieuvedené cieľmi a hlavnými prínosmi tejto práce sú:

1. Nájdenie časovo-optimálnej prevádzky a prevádzky s minimálnou spotrebou rozpúšťadla pre všeobecný vsádzkový diafiltračný proces.

2. Nájdenie ekonomickej prevádzky zohľadňujúcej súčasne čas vsádzky a spotrebu rozpúšťadla pre všeobecný vsádzkový diafiltračný proces.
3. Nájdenie časovo-optimálnej prevádzky pre všeobecný vsádzkový diafiltračný proces s viac-zložkovou separáciou.
4. Nájdenie časovo-optimálnej prevádzky pre všeobecný vsádzkový diafiltračný proces v prítomnosti zanášania membrány s priebežným odhadovaním parametrov matematického modelu zanášania.

Použitá metodika využíva numerické a analytické metódy dynamickej optimalizácie.

1.2 Štruktúra tejto práce

Ako prvý je objasnený skúmaný proces diafiltrácie. Uvádzame zovšeobecnený proces spolu s jeho matematickým modelom vo forme obyčajných diferenciálnych rovníc. Ďalej formulujeme požiadavky na prevádzku procesu vo forme účelovej funkcie optimalizačného problému a vo forme separačného cieľa, ktoré sú formulované ako podmienky v tvare rovností a spolu s matematickým modelom procesu tvoria obmedzenia spomenutého optimalizačného problému. Takto získaný optimalizačný problém môže byť klasifikovaný ako problém dynamickej optimalizácie. V ďalšom sa teda venujeme riešeniu tohto problému, kde využívame analytickú metódu dynamickej optimalizácie známu ako Pontrjaginov princíp minima. Odvođením podmienok optimality získame všeobecný explicitný nelineárny zákon riadenia, ktorý, ako je ukázané, dáva pre širokú triedu diafiltračných procesov súbor jednoducho implementovateľných a pre procesného inžiniera či operátora membránového procesu zrozumiteľných úkonov (krokov) na dosiahnutie optimálnej prevádzky procesu. V poslednej časti práce sa venujeme rozšíreniu dosiahnutých výsledkov na všeobecnejšie formulácie účelových funkcií, na všeobecnejšie diafiltračné problémy a na problémy spojené s praktickou implementáciou optimálnej prevádzky.

Diafiltrácia

Diafiltrácia je membránový filtračný proces založený oddeľovaní rozpustených zložiek z roztoku na základe rozdielnej veľkosti častíc týchto zložiek. Uvažujeme kvapalné roztoky, ktoré obsahujú rozpustené zložky a rozpúšťadlo, ktorým je spravidla voda. Cieľom procesu diafiltrácie je koncentrovať v roztoku hodnotné zložky, ktorými sú spravidla makrozložky a zároveň odstrániť balastné zložky, t.j. mikrozložky.

2.1 Opis procesu

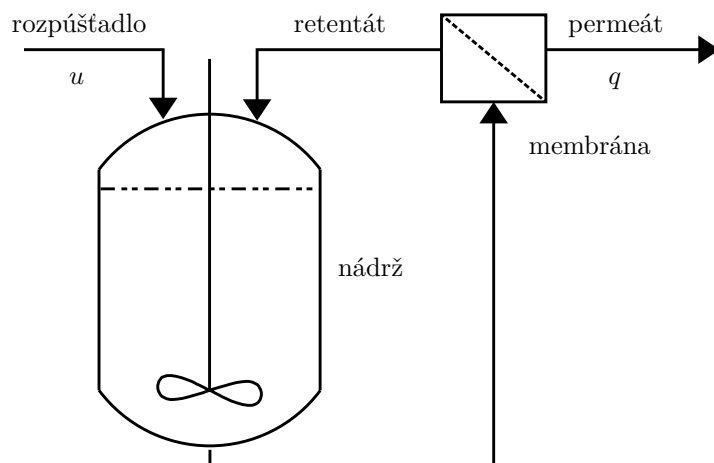
Schéma uvažovaného vsádzkového diafiltračného procesu je ukázaná na obrázku 2.1. Spracovávaný roztok je vo svojom počiatkovom objeme na začiatku prevádzky prítomný v nádrži. Z tejto je postupne privádzaný k membránovému modulu. V tomto module sa nachádza polopriepustná membrána, ktorá je navrhnutá a vyrobená tak, aby zadržala čo najväčšie množstvo makrozložiek a aby prepustila (odfiltrovala) čo najväčšie množstvo balastných látok.

Relatívne množstvo zložky zadržaná v roztoku je vyjadrené cez koeficient odporu membrány k i -tej zložke a udáva sa ako

$$R_i = 1 - \frac{c_{pi}}{c_i}, \quad (2.1)$$

kde c_{pi} , resp. c_i , označuje koncentráciu zložky v permeáte, resp. v retentáte a nádrži. Z predchádzajúceho je zrejmé, že ideálnym prípadom je úplné zadržanie makrozložiek v roztoku, a teda ich koeficient odporu je 1 (t.j. 100%) a naopak koeficient odporu balastných látok je nula. Často však môže nastať situácia, keď tieto koeficienty závisia od ostatných faktorov; v uvažovanom prípade konštantného tlaku a teploty od koncentracii jednotlivých zložiek vo filtrovanom roztoku.

Časť filtrovaného roztoku, ktorá nie je prepustená cez membránu, je kontinuálne odvádzaná späť do nádrže, kde sa mieša so zvyškom práve nefiltrovaného roztoku. Slučka “nádrž – membrána – nádrž” je udržiavaná pri konštantnom tlaku. Takéto riadenie je šetrné voči používanej membráne a zároveň stabilizuje systém od vonkajších vplyvov. Permeát, časť filtrovaného roztoku prepustená cez membránu, je odvádzaný zo systému. Jeho objemový prietok cez membránu q môže byť určený ako funkcia koncentracii jednotlivých zložiek roztoku. Podobne, ako v prípade koeficientu odporu membrány k určitej zložke, aj prietok filtrátu cez membránu môže byť opísaný matematickým modelom, ktorý môže vychádzať z rýdzo teoretických, experimentálnych alebo teoreticko-empirických poznatkov.



Obr. 2.1: Schéma zovšeobecného vsádzkového diafiltračného procesu.

2.2 Matematický model procesu

Ako už bolo spomenuté, cieľom diafiltrácie je koncentrovať v roztoku požadované látky a vymyť nečistoty. Z praktického pohľadu možno hovoriť o dosiahnutí požadovanej koncentrácie makrozložky a nečistôt na konci prevádzky. Keďže koeficienty odporu ako aj prietok filtrátu sú funkciou koncentrácií zložiek prítomných v roztoku, proces diafiltrácie môže byť riadený pridávaním čistého rozpúšťadla na ovplyvňovanie týchto koncentrácií. Objemový prietok pridávaného rozpúšťadla označíme $u(t)$. Vhodnou voľbou riadiacej veličiny je zvoliť túto ako pomer prietokov pridávaného rozpúšťadla a permeátu. Takto definovaná veličina

$$\alpha(t) = \frac{u(t)}{q(t)} \quad (2.2)$$

je bezrozmerná.

Vzhľadom na voľbu riadiacej veličiny môže byť matematický model uvažovaného procesu nájdený pomocou materiálových bilancií v tvare (Kovács a kol., 2009)

$$\frac{dc_i}{dt} = \frac{c_i q}{V} (R_i - \alpha), \quad c_i(0) = c_{i,0}, \quad i = 1, 2, \quad (2.3a)$$

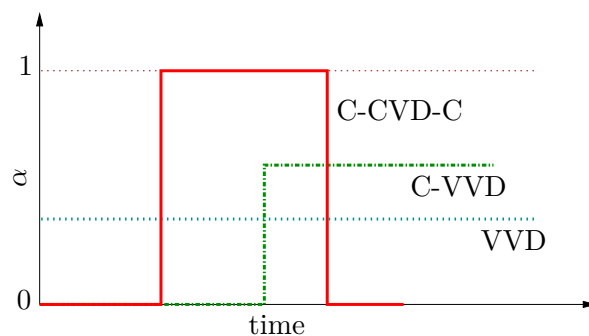
$$\frac{dV}{dt} = u - q = (\alpha - 1)q, \quad V(0) = V_0, \quad (2.3b)$$

kde $c_{i,0}$ udáva počiatočnú koncentráciu látky i , V predstavuje objem retentátu v čase t a V_0 jeho počiatočnú hodnotu, t.j. počiatočný objem spracovávaného roztoku.

2.3 Formulácia problému optimálnej prevádzky

Existujú viaceré tradične používané postupy nastavovania hodnôt veličiny $\alpha(t)$ počas priebehu procesu. Tieto sú načrtnuté na obrázku 2.2 a sú kombináciou troch jednoduchých režimov (Jaffrin a Charrier, 1994):

1. koncentračný režim (C , $\alpha = 0$) – žiadne rozpúšťadlo nie je použité na ovplyvňovanie koncentrácií zložiek; tento režim predstavuje štandardnú membránovú filtráciu a slúži na zvýšenie koncentrácie makrozložiek,



Obr. 2.2: Tradičné prístupy k prevádzke vsádzkovej diafiltrácie.

2. diafiltrácia s konštantným objemom (CVD, $\alpha = 1$) – prietok pridávaného rozpúšťadla je zhodný s prietokom permeátu; tento režim slúži na vymývanie (znižovanie koncentrácií) nečistôt,
3. diafiltrácia s premenlivým objemom (VVD, $0 < \alpha < 1$) – prietok pridávaného rozpúšťadla je menší ako prietokom permeátu; tento režim slúži na súčasné zvyšovanie koncentrácie makrozložiek a znižovanie koncentrácie nečistôt.

Prirodzenou otázkou je či tieto prevádzkové stratégie vyúsťujú do optimálnej prevádzky diafiltračného procesu. Nájst optimálnu prevádzku (riadenie) procesu diafiltrácie znamená nájsť dynamický (časovo závislý) priebeh trajektórie $\alpha(t)$ tak, že táto minimalizuje zvolenú účelovú funkciu. Túto funkciu zadefinujeme pre študovaný problém v zovšeobecnenom tvare ako

$$\mathcal{J} := w_T \mathcal{J}_T + w_D \mathcal{J}_D, \quad (2.4)$$

kde

$$\mathcal{J}_T := t_f = \int_0^{t_f} 1 dt \quad (2.5)$$

predstavuje zámer minimalizovania času prevádzky (vsádzky) t_f a

$$\mathcal{J}_D := \int_0^{t_f} \alpha q dt \quad (2.6)$$

vyjadruje spotrebu rozpúšťadla počas behu vsádzky. Koeficienty $w_T > 0$ a $w_D > 0$ vyjadrujú pomerové zastúpenie dôležitosti jednotlivých častí účelovej funkcie. Pre jednoduchšiu a praktickejšiu interpretáciu môžeme tiež hovoriť o funkcii \mathcal{J} ako o funkcii, ktorá vyjadruje prevádzkové náklady a výnosy jednej vsádzky diafiltračného procesu berúc do úvahy súčasne kapacitu výrobu a cenu elektrickej energie (\mathcal{J}_T) ako aj náklady na nákup a prečerpávanie rozpúšťadla (\mathcal{J}_D). Koeficienty w_T a w_D potom vyjadrujú jednotkové ceny týchto čiastkových príspevkov v €/h respektíve €/L.

Matematický zápis optimalizačného problému definovaného v predošlom texte môžeme zostrojiť ako

$$\min_{\alpha(t) \in [0, \alpha_{\max}]} w_T \mathcal{J}_T + w_D \mathcal{J}_D \quad (2.7a)$$

$$\text{s.t. } \dot{c}_i = \frac{c_i q}{V} (R_i - \alpha), \quad c_i(0) = c_{i,0}, \quad c_i(t_f) = c_{i,f}, \quad (2.7b)$$

$$\dot{V} = (\alpha - 1)q, \quad V(0) = V_0, \quad (2.7c)$$

kde koncentrácia makrozložky bude zvýšená z $c_{1,0}$ na $c_{1,f}$ a koncentrácia mikrozložky bude znížená z $c_{2,0}$ na $c_{2,f}$. Horná hranica hodnoty riadiacej veličiny, α_{\max} , sa môže líšiť v závislosti na aplikácii a prevádzkových podmienkach. Zaujímavými sú hodnoty $\alpha > 1$, keďže tieto nie sú súčasťou konvenčných prevádzkových stratégií. Ukazuje sa, že $\alpha_{\max} = \infty$ môže byť interpretovaná ako náhle pridanie istého množstva rozpúšťadla do roztoku napríklad na začiatku alebo na konci prevádzky. Tento krok zachováva konštantný pomer koncentracii zložiek v roztoku.

Optimálna prevádzka vsádzkovej diafiltrácie

Riešenie problému optimálneho riadenia znamená nájsť optimálne trajektórie riadiacich veličín, t.j. takých ktoré vyvolajú zodpovedajúci priebeh riadených veličín (napr. stavov proces), že tento dá najmenšiu možnú hodnotu funkcionálu \mathcal{J} pri splnení definovaných ohraňení. Toto predstavuje vo všeobecnosti veľmi zložitý matematický problém. Existujú však metódy, pomocou ktorých sa táto úloha dá vyriešiť analyticky. Tieto metódy zahŕňajú variačný počet, dynamické programovanie a Pontrjaginov princíp minima a sú postavené na princípe určovania kandidátov pre optimálne riadenie na základe riešenia podmienok optimality problému optimálneho riadenia. V predkladanej práci využívame metódu Pontrjaginov princíp minima (Bryson, Jr. a Ho, 1975; Pontryagin a kol., 1962), ktorá ekvivalentne definuje problém optimálneho riadenia ako problém minimalizácie Hamiltonovej funkcie. Hamiltonovu funkciu môžeme písať ako

$$H = F + \boldsymbol{\lambda}^T \mathbf{f}, \quad (3.1)$$

kde F predstavuje podintegrálnu funkciu (integrand) účelovej funkcie \mathcal{J} , $\boldsymbol{\lambda}$ je vektor adjungovaných premenných a \mathbf{f} vektor pravých strán diferenciálnych rovníc modelu uvažovaného procesu.

Uvažujúc optimalizačný problém (2.7) s vektorom stavových veličín $\mathbf{x} = (c_1, c_2, V)^T$ a skalárnou riadiacou veličinou α , Pontrjaginov princíp minima hovorí, že optimálne riadenie sa dá nájsť ako

$$\alpha^* = \arg \min_{\alpha \in [\alpha_{\min}, \alpha_{\max}]} H(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}, \alpha) \equiv H_0(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}) + H_\alpha(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda})\alpha, \quad (3.2a)$$

$$\dot{\mathbf{x}} = \frac{\partial H}{\partial \boldsymbol{\lambda}}, \quad \mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0, \quad \mathbf{x}(t_f) = \mathbf{x}_f, \quad (3.2b)$$

$$\dot{\boldsymbol{\lambda}} = -\frac{\partial H}{\partial \mathbf{x}}, \quad (3.2c)$$

$$H = 0, \quad \forall t \in [t_0, t_f]. \quad (3.2d)$$

V prvom hrubom priblížení sa tento problém nejaví ako veľmi odlišný od problému (2.7). Napríklad podmienka (3.2b) je iba prepisom modelu procesu s definovanými počiatočnými a koncovými podmienkami (ako v (2.7)). Podmienka (3.2d), ktorú využijeme v ďalšom texte, však už určuje optimálne riadenie bližšie. Táto podmienka vychádza z nasledovných dvoch faktov: (a) optimálna Hamiltonova funkcia pre proces opísaný časovo invariantnými dife-

renciálnymi rovnicami je konštantná pre všetky $t \in [t_0, t_f]$ (Bryson, Jr. a Ho, 1975) a (b) $H(t_f) = 0$ keďže koncový čas t_f nie je pevne stanovený (Johnson a Gibson, 1963).

Hamiltonova funkcia je pre náš problém lineárna v premennej α . Jej minimum bude teda dosiahnuté ak je riadiaca trajektória α^* (saturovaná) na ohraničeniach alebo na tzv. singularnom oblúku

$$\alpha^* = \begin{cases} \alpha_{\min} & \text{if } H_\alpha > 0, \\ \alpha_{\max} & \text{if } H_\alpha < 0, \\ \alpha_{\text{sing}} & \text{if } H_\alpha = 0. \end{cases} \quad (3.3)$$

Optimálne riadenie je teda definované ako po častiach spojitá trajektória kde prepínanie medzi jednotlivými oblúkmi je realizované na základe hodnoty H_α . Singularne riadenie α_{sing} , t.j. riadenie na singularnom oblúku, sa dá nájsť derivovaním podmienky $H_\alpha = 0$ v čase a následnou úpravou.

Takto definovaná optimálna trajektória riadenia neuvažuje obmedzenia na trajektóriu stavov. Platí teda pre relatívne jednoduchú definíciu problému optimálnej prevádzky diafiltrácie (problém (2.7)), ktorá však má široké možnosti uplatnenia. Pre podrobnejšiu diskusiu o podmienkach optimality pre optimálnu diafiltráciu v prítomnosti stavových obmedzení odkazujeme čitateľa na našu štúdiu Paulen a kol. (2015), kde sú tieto prípady podrobne riešené a ktorá je priložená k tejto práci.

Podmienky prepínania (3.3) použitím funkcie $H_\alpha(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda})$ uvažujú so znalosťou adjungovaných premenných $\boldsymbol{\lambda}$. Tieto sú však fyzikálne nemerateľné a ich výpočet sa často môže ukázať ako náročný alebo prakticky nerealizovateľný. Podľa štúdií Johnson a Gibson (1963) a Srinivasan a kol. (2003) je však často možné nájsť vyjadrenie singularneho oblúku $H_\alpha(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}) = 0$ v stavovom priestore ako $S(\mathbf{x}) = 0$. Ak je $S(\mathbf{x}) = 0$ známe, optimálna trajektória α^* sa dá potom vyjadriť ako spätnoväzbové stavové riadenie založené na meraní veličín c_1, c_2, V .

Pri ďalšom odvodzovaní využijeme fakt, že podmienka $H_\alpha = 0$ implikuje $H_0 = 0$ na základe vyššie diskutovanej podmienky (3.2d). Tieto podmienky platia pozdĺž celej trajektórie optimálneho riadenia a teda aj časové derivácie funkcií H_α a H_0 budú rovné nule. Môžeme teda písať podmienky

$$H_0(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}) = 0, \quad (3.4a)$$

$$H_\alpha(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}) = 0, \quad (3.4b)$$

$$\frac{d^i H_0}{dt^i}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}, \alpha) = 0, \quad (3.4c)$$

$$\frac{d^i H_\alpha}{dt^i}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}, \alpha) = 0, \quad (3.4d)$$

ktoré použijeme na elimináciu premenných $\boldsymbol{\lambda} = (\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3)^T$.

3.1 Problém minimalizácie času prevádzky

Uvažujme prípad $w_D = 0$. Optimálna prevádzka neuvažuje spotrebu rozpúšťadla ale iba čas potrebný na vykonanie vsádzky. Použitím rovníc (3.4a), (3.4b), (3.4d) a (2.3) dostávame podmienku

$$S = \lambda_1 c_1 S_1 + \lambda_2 c_2 S_2 = 0, \quad (3.5)$$

kde S_1 a S_2 sú dané ako

$$S_1(c_1, c_2) = (R_1 - 1)(q + c_1q_1 + c_2q_2) + q(c_1R_{11} + c_2R_{12}), \quad (3.6a)$$

$$S_2(c_1, c_2) = (R_2 - 1)(q + c_1q_1 + c_2q_2) + q(c_1R_{21} + c_2R_{22}), \quad (3.6b)$$

s pomocnými premennými

$$q_1 = \frac{\partial q}{\partial c_1}, \quad R_{11} = \frac{\partial R_1}{\partial c_1}, \quad R_{21} = \frac{\partial R_2}{\partial c_1}, \quad (3.7a)$$

$$q_2 = \frac{\partial q}{\partial c_2}, \quad R_{12} = \frac{\partial R_1}{\partial c_2}, \quad R_{22} = \frac{\partial R_2}{\partial c_2}. \quad (3.7b)$$

Podmienka (3.5) nie je už viac redukovateľná, avšak obsahuje časovo-premenné adjungované veličiny, bez znalosti ktorých môže byť ťažké (dokonca až nemožné) identifikovať trajektórie stavov spĺňajúcich túto podmienku. Existujú však prípady kedy môžeme dospieť k hodnotným záverom:

- Oba koeficienty $R_1 \leq 1$ i R_2 sú konštantné ($R_{ij} = 0$). Táto situácia sa bežne objavuje v odbornej literatúre o membránovej separácii (napr. Cheryan (1998); Field (2011); Ma a kol. (2009)). Použité predpoklady vyúsťujú do vyjadrenia pre singulárny oblúk v tvare

$$S(c_1, c_2) = q + c_1q_1 + c_2q_2 = 0. \quad (3.8)$$

- $R_1 = 1$ ($R_{11} = R_{12} = 0$). Aj toto reprezentuje veľmi častú situáciu keď makrozložka neprechádza cez membránu. Podmienku (3.5) pre singulárny oblúk môžeme potom vyjadriť ako

$$S(c_1, c_2) = (R_2 - 1)(q + c_1q_1 + c_2q_2) + q(c_1R_{21} + c_2R_{22}) = 0. \quad (3.9)$$

Ďalej môžeme derivovať podľa času podmienku (3.5), čo je samozrejme ekvivalentné použitiu druhej časovej derivácie podmienky (3.4b). Výslednú rovnicu môžeme zapísať spolu s rovnicami (3.4b) a (3.4d) a takto dostávame homogénny systém lineárnych rovníc s premennými $\lambda_1 c_1$, $\lambda_2 c_2$ and $\lambda_3 V$. Pre náš prípad má zmysel uvažovať iba netriviálne riešenia tejto sústavy a teda môžeme položiť rovný nule determinant matice koeficientov závislých premenných vyšetřovaného systému. Po úprave dostaneme

$$\begin{vmatrix} 1 & 1 & -1 \\ S_1 & S_2 & 0 \\ a_1\alpha + b_1 & a_2\alpha + b_2 & b_3 \end{vmatrix} = 0 \Rightarrow \alpha_{\text{sing}} = \frac{(S_1 - S_2)b_3 + S_1b_2 - S_2b_1}{S_2a_1 - S_1a_2}, \quad (3.10)$$

kde výrazy a_i a b_i pre $i = 1, 2$ sú dané ako

$$a_i = -c_1q \frac{\partial S_i}{\partial c_1} - c_2q \frac{\partial S_i}{\partial c_2}, \quad (3.11a)$$

$$b_i = c_1 \left(qR_1 \frac{\partial S_i}{\partial c_1} - (qR_{i1} + R_iq_1)S_1 \right) + c_2 \left(qR_2 \frac{\partial S_i}{\partial c_2} - (qR_{i2} + R_iq_2)S_2 \right), \quad (3.11b)$$

a

$$b_3 = c_1q_1S_1 + c_2q_2S_2. \quad (3.11c)$$

Detaily postupu získania tohto riešenia sú opísané v publikáciách Paulen a kol. (2011b) a Paulen a Fikar (2016), ktoré sú priložené k tejto práci.

3.2 Problém minimalizácie množstva pridaného rozpúšťadla

Uvažujme prípad $w_T = 0$. Optimálna prevádzka neberie do úvahy čas potrebný na vykonanie vsádzky ale iba spotrebu rozpúšťadla. Kombinácia rovníc (3.4a), (3.4b), (3.4c) a (2.3) dáva podmienku

$$S = \lambda_1 c_1 S_1 + \lambda_2 c_2 S_2 = 0, \quad (3.12)$$

kde

$$S_1(c_1, c_2) = R_1 - 1 + c_1 R_{11} + c_2 R_{12}, \quad (3.13a)$$

$$S_2(c_1, c_2) = R_2 - 1 + c_1 R_{21} + c_2 R_{22}. \quad (3.13b)$$

Táto rovnica opäť závisí od adjungovaných premenných až na špeciálne prípady:

- Jeden z koeficientov R_1 alebo R_2 je konštantný. V tomto prípade singulárny oblúk neexistuje a trajektória optimálneho riadenia je saturovaná na svojich obmedzeniach, tzv. *bang-bang* riadenie.
- $R_1 = 1$ ($R_{11} = R_{12} = 0$). Podmienka pre singulárny oblúk je vyjadriteľná v stavovom priestore ako

$$S(c_1, c_2) = R_2 - 1 + c_1 R_{21} + c_2 R_{22} = 0. \quad (3.14)$$

Ak ďalej zoberieme tri lineárne nezávislé homogénne rovnice (3.4a), (3.4c) and deriváciu S z (3.12) podľa času, môžeme určiť maticu koeficientov tejto sústavy. Determinant tejto matice nám dá podmienku pre existenciu singulárneho oblúka v tvare

$$\alpha_{\text{sing}} = \frac{b_2 S_1 - b_1 S_2}{a_1 S_2 - a_2 S_1}, \quad (3.15)$$

kde

$$a_i = -c_1 \frac{\partial S_i}{\partial c_1} - c_2 \frac{\partial S_i}{\partial c_2}, \quad (3.16a)$$

$$b_i = c_1 R_{i1} \frac{\partial S_i}{\partial c_1} + c_2 R_{i2} \frac{\partial S_i}{\partial c_2} - c_1 R_{i1} S_1 - c_2 R_{i2} S_2. \quad (3.16b)$$

Details postupu získania tohto riešenia sú opísané v publikáciách Paulen a kol. (2012) a Paulen a Fikar (2016), ktoré sú priložené k tejto práci.

3.3 Optimálne riadenie pre špeciálne prípady

Ako sme ukázali, podmienku pre prepínanie optimálneho riadenia je v špeciálnych prípadoch možné vyjadriť ako funkciu koncentrácií makro- a mikrozložky $S(c_1, c_2) = 0$. Z toho vyplýva zaujímavý poznatok a síce taký, že na vykonanie optimálnej prevádzky nie je potrebné poznať objem retentátu resp. objem roztoku v systéme. Tento fakt je daný redukovateľnosťou diferenciálnych rovníc modelu pri spomenutých špeciálnych prípadoch (Paulen a Fikar, 2016).

Môžeme teda určiť celkovú optimálnu prevádzku pre minimalizáciu času prevádzky i minimalizáciu množstva rozpúšťadla pridaného počas prevádzky pre vyššie uvedené špeciálne prípady (Paulen a kol., 2012, 2011b, 2015):

1. Prvým krokom je buď koncentračný režim ($\alpha = \alpha_{\min} = 0$) alebo prevádzka s maximálnou hodnotou $\alpha = \alpha_{\max}$. Tento krok je vykonávaný dovtedy kým nie je splnená podmienka $S(c_1, c_2) = 0$. Voľba použitého režimu závisí od znamienka $S(c_{1,0}, c_{2,0})$. Pre $S(c_{1,0}, c_{2,0}) < 0$ sa použije $\alpha = 0$, pre $S(c_{1,0}, c_{2,0}) > 0$ je $\alpha = \alpha_{\max}$.
2. Druhým krokom je samotná diafiltrácia s časovo premennou hodnotou $\alpha_{\text{sing}}(c_1, c_2)$ daná ako (3.10) alebo (3.15). Táto trajektória riadiacej veličiny spôsobí zachovanie podmienky $S(c_1, c_2) = 0$ počas tohto kroku.
3. Konečne v treťom kroku sa prevádzka nastaví na obmedzeniach riadiacej veličiny, teda $\alpha = 0$ alebo $\alpha = \alpha_{\max}$ až pokiaľ nebudú splnené koncové podmienky na hodnoty koncentrácií zložiek.

Je nutné poznamenať, že táto optimálna prevádzka je všeobecne platná pre spomenuté typy membrán (dané vlastnosťami R_1 a R_2), ale môže nastať situácia že niektorý z krokov optimálnej prevádzky bude vynechaný v závislosti na počiatočných a koncových podmienkach podmienkach (napr. ak $S(c_{1,0}, c_{2,0}) = 0$, prvý krok sa vynechá) alebo na základe tvaru funkčných závislostí $R_2(c_1, c_2)$ a $q(c_1, c_2)$.

3.4 Optimálne riadenie pre všeobecné prípady

Vo všeobecnom prípade nie je možné získať explicitné vyjadrenie podmienky singulárneho oblúku bez použitia adjungovaných premenných λ . Na druhej strane výrazy získané pre trajektóriu riadenia na singulárnom oblúku (viď. rovnice (3.10) a (3.15)) sú závislé iba od koncentrácií.

Je možné predpokladať, že sa trojkrovová povaha optimálnej prevádzky zachová aj vo všeobecnom prípade a teda konkrétna optimálna prevádzka môže byť určená jednoduchou numerickou optimalizáciou. Táto predstavuje problém nelineárneho programovania, kde premennými sú časové dĺžky jednotlivých krokov Δt^1 , Δt^2 a Δt^3 a hodnoty α^1 a α^3 , ktoré určujú prevádzkový režim na prvom resp. treťom intervale. Ako už bolo spomenuté, optimálna hodnota α na druhom intervale bude daná ako (3.10) pre minimalizáciu času prevádzky resp. ako (3.15) pre minimalizáciu množstva rozpúšťadla pridaného počas prevádzky. Napriek nelineárnemu charakteru takto postaveného problému je tento možné vyriešiť veľmi efektívne (Paulen a kol., 2011a) použitím štandardných nástrojov, napr. funkcia `fmincon` z prostredia MATLAB alebo riešiteľ Ipopt (Biegler a kol., 2002).

Podrobnejšiu diskusiu o numericky i analyticky získanej optimálnej prevádzke je možné nájsť v prácach Paulen a Fikar (2016); Paulen a kol. (2012, 2011a,b). Takisto sú v týchto prácach uvedené viaceré príklady, ktoré ukazujú širokú použiteľnosť princípov uvedených v tejto kapitole pre potreby praxe. Navyše je ukázané, ako je zrejme aj z predchádzajúcich podkapitol, že optimálna prevádzka vsádzkovej diafiltrácie v drvivej väčšine prípadov nekorešponduje s konvenčnými metódami používanými v priemysle.

Rozšírenia optimálnej prevádzky vsádzkovej diafiltrácie

V tejto kapitole opíšeme rozšírenia optimálnej prevádzky z predchádzajúcej kapitoly na ekonomickú prevádzku diafiltračného procesu a na časovo-optimálnu prevádzku viaczložkovej diafiltrácie.

4.1 Ekonomická prevádzka vsádzkovej diafiltrácie

Pre problém (2.7) môžeme Hamiltonovu funkciu na singulárnom oblúku vyjadriť ako

$$\begin{aligned} H(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}, \alpha) &= w_T + w_D \alpha q + \lambda_1 \frac{c_1 q}{V} (R_1 - \alpha) + \lambda_2 \frac{c_2 q}{V} (R_2 - \alpha) + \lambda_3 (\alpha - 1) q \\ &= H_0(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}) + H_\alpha(\mathbf{x}, \boldsymbol{\lambda}) \alpha = 0, \end{aligned} \quad (4.1)$$

kde $\mathbf{x} = (c_1, c_2, V)^T$ a $H_0 = H_\alpha = 0$.

Berúc do úvahy obe podmienky $H_0 = H_\alpha = 0$ môžeme eliminovať adjungovanú premennú λ_3 a dostať podmienku

$$w_T + q w_D + \lambda_1 c_1 \frac{q}{V} (R_1 - 1) + \lambda_2 c_2 \frac{q}{V} (R_2 - 1) = 0, \quad (4.2)$$

ktorá po následnom diferencovaní vzhľadom na čas a úprave dáva

$$w_T (q + c_1 q_1 + c_2 q_2) + q^2 w_D - \lambda_1 c_1 \frac{q^2}{V} (R_{11} c_1 + R_{12} c_2) - \lambda_2 c_2 \frac{q^2}{V} (R_{21} c_1 + R_{22} c_2) = 0. \quad (4.3)$$

Podobne ako v predošlej kapitole sa všeobecná podmienka pre singulárny oblúk ukazuje vzhľadom na počet premenných ako ďalej nereducovateľná. Opäť je však možné vytýčiť špeciálne prípady, pri ktorých je singulárna podmienka na prepnutie riadenia daná ako funkcia koncentracii rozpustených zložiek. Tieto prípady môžeme zhrnúť takto:

- Oba koeficienty $R_1 \leq 1$ i R_2 sú konštantné ($R_{ij} = 0$). Pre podmienku prepnutia platí

$$S(c_1, c_2, w_T, w_D) = -w_T \left(q + \sum_{i=1}^2 c_i q_i \right) - w_D q^2 = 0. \quad (4.4)$$

- $R_1 = 1$ ($R_{11} = R_{12} = 0$). Podmienka prepnutia optimálneho riadenia je daná ako

$$S(c_1, c_2, w_T, w_D) = w_T \left[(R_2 - 1) \left(q + \sum_{i=1}^2 c_i q_i \right) + q \sum_{i=1}^2 c_i R_{2i} \right] + w_D q^2 \left(R_2 - 1 + \sum_{i=1}^2 c_i R_{2i} \right) = 0. \quad (4.5)$$

Trajektóriu singulárneho riadenia dostaneme použitím diferenciálnych rovníc modelu procesu a časovej derivácie (4.4) alebo (4.5)

$$\alpha_{\text{sing}} = \frac{\frac{\partial S}{\partial c_1} c_1 R_1 + \frac{\partial S}{\partial c_2} c_2 R_2}{\frac{\partial S}{\partial c_1} c_1 + \frac{\partial S}{\partial c_2} c_2}. \quad (4.6)$$

Vidíme, že sme dostali optimálnu prevádzku závislú na hodnote koeficientov w_T a w_D , ktoré zohľadňujú relatívnu dôležitosť (váhu) potreby minimalizovať koncový čas alebo celkovú spotrebu rozpúšťadla. Je teda možné hovoriť o prevádzke optimálnej vzhľadom na komplexnú ekonomickú účelovú funkciu.

Podrobnejšie je o probléme ekonomickej prevádzky všeobecnej vsádzkovej diafiltrácie pojednané v Paulen a kol. (2015) a Paulen a Fikar (2016) (viď. prílohy tejto práce).

Ekonomická prevádzka vsádzkovej diafiltrácie pri podmienkach limitujúceho prietoku

V práci Paulen a kol. (2013) sme sa venovali problému ekonomickej prevádzky diafiltračného procesu kde je použitá ideálna membrána ($R_1 = 1$ a $R_2 = 0$), prietok cez ktorú môže byť opísaný pomocou filmovej teórie prestupu látky ako

$$q(c_1) = kA \ln \frac{c_{\text{lim}}}{c_1}, \quad (4.7)$$

kde k je koeficient prestupu látky, A reprezentuje plochu membrány a pod označením c_{lim} sa rozumie tzv. limitujúca koncentrácia makrozložky, pri ktorej sa prietok cez membránu zastaví. Tento model je jedným z najpoužívanejších pre opis prietoku cez membránu v membránovom inžinierstve (Aimar a Field, 1992).

Podmienka na prepnutie optimálneho riadenia (4.4) po dosadení a úprave udáva že singulárny oblúk je daný konštantnou koncentráciou makrozložky

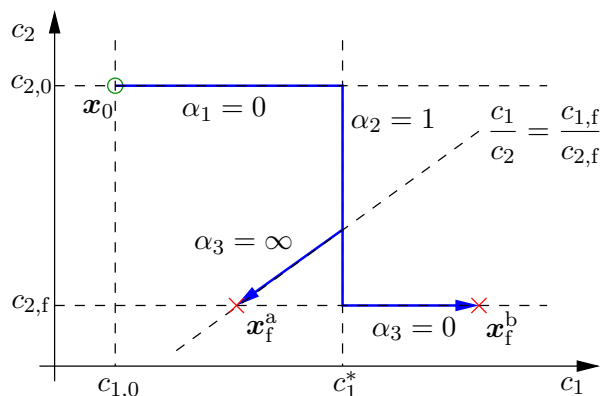
$$c_1^* = c_{\text{lim}} \exp \left(\frac{w_T - \sqrt{w_T^2 + 4kAw_T w_D}}{2kAw_D} \right). \quad (4.8)$$

Pre študovaný typ procesu bude táto podmienka zachovaná singulárny riadením $\alpha_{\text{sing}} = 1$.

Podmienka (4.8) teda na základe voľby pomernej významnosti jednotlivých častí funkcionálu (2.4) (nastavenie hodnoty w_T/w_D) udáva optimálnu koncentráciu c_1 pre diafiltráciu s konštantným objemom. Pre limitné prípady podmienky (4.8) dostávame

- Časovo-optimálnu prevádzku ($w_T > 0, w_D = 0$)

$$c_1^* = \frac{c_{\text{lim}}}{e}, \quad (4.9)$$



Obr. 4.1: Optimálna prevádzka diafiltrácie pri limitujúcom prietoku v koncentračnom diagrame s počiatočným bodom (o) a dvoma možnými koncovými bodmi (x).

- Prevádzku s použitím minimálneho množstva rozpúšťadla ($w_T = 0, w_D > 0$)

$$c_1^* = c_{\text{lim}}, \quad (4.10)$$

Tieto prípady sú samozrejme ekvivalentné použitiu postupu pre jednoúčelovú optimálnu prevádzku opísanú v kapitole 3.

Optimálna prevádzka je ilustrovaná na Obr. 4.1. Uvažujeme najčastejší praktický prípad počiatočných koncentrácií $\mathbf{x}_0 = (c_{1,0}, c_{2,0})^T$ kde $c_{1,0} < c_1^*$. Pre celkový priebeh prevádzky môžeme rozlíšiť dva prípady

- $c_{1,f} < c_1^*$ (označený na Obr. 4.1 ako \mathbf{x}_f^a),
- $c_{1,f} > c_1^*$ (označený na Obr. 4.1 ako \mathbf{x}_f^b).

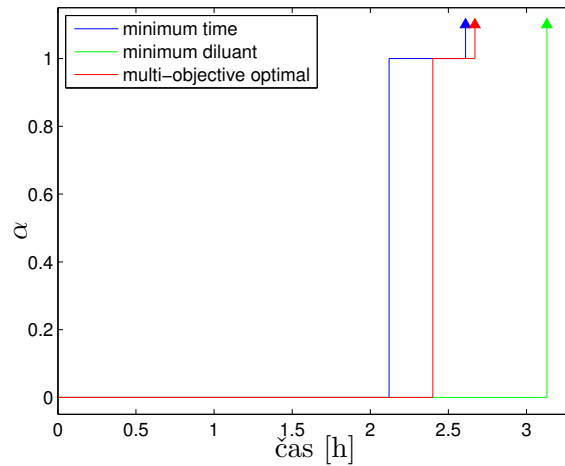
Ekonomická optimálna prevádzka potom bude nasledovať sekvenciu operačných režimov buď a) $\alpha = \{0, 1, \infty\}$ alebo b) $\alpha = \{0, 1, 0\}$.

Výnimka z takto definovanej štruktúry optimálnej prevádzky nastane ak $c_1^* \geq c_{2,0} c_{1,f} / c_{1,0}$. Toto znamená, že krok s diafiltráciou s konštantným objemom bude vynechaný a výsledná optimálna prevádzka použije bang-bang riadenie $\alpha = \{0, \infty\}$.

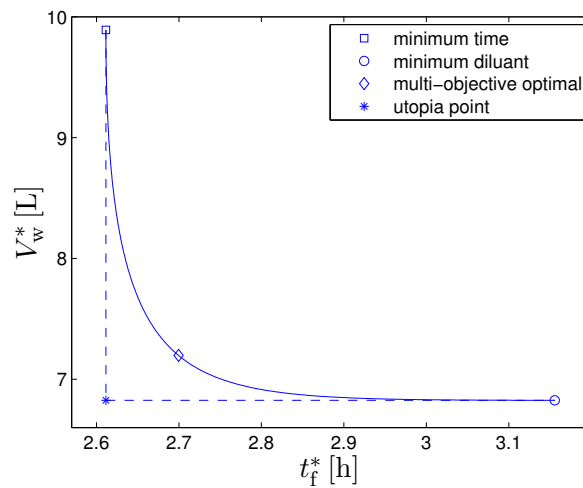
V ďalšom ukážeme optimálnu prevádzku na konkrétnom príklade. Uvažujeme $c_{\text{lim}} = 319 \text{ mol/m}^3$, $k = 4.79 \times 10^{-6} \text{ m/s}$, a $A = 1 \text{ m}^2$. Cieľom prevádzky je spracovať 100 L roztoku. Počiatočné a koncové koncentrácie sú $(c_{1,0}, c_{2,0})^T = (10 \text{ mol/m}^3, 31.5 \text{ mol/m}^3)^T$ resp. $(c_{1,f}, c_{2,f})^T = (100 \text{ mol/m}^3, 10 \text{ mol/m}^3)^T$. Berúc do úvahy tieto parametre a predchádzajúcu analýzu, optimálna prevádzka je daná buď ako $\alpha = \{0, 1, \infty\}$ alebo ako $\alpha = \{0, \infty\}$ v závislosti od hodnôt w_T a w_D . Pre ekonomickú prevádzku použijeme $w_T = 0.0567 \text{ €/h}$ a $w_D = 10 \text{ €/m}^3$.

Obrázok 4.2 ukazuje priebehy optimálnych trajektórií pre prevádzku s minimálnym časom (minimum time), s minimálnou spotrebou rozpúšťadla (minimum diluant), a ekonomickou účelovou funkciou (multi-objective optimal). Ako môžeme pozorovať, v prípade prevádzky s minimálnym časom spustíme krok s $\alpha = 1$ skôr ako v prípade ekonomickej prevádzky. Prevádzka s minimálnou spotrebou rozpúšťadla vynechá krok diafiltrácie s konštantným objemom a je teda daná dvoma krokmi kde $\alpha = \{0, \infty\}$.

Obrázok 4.3 ukazuje Paretové optimálne hodnoty jednotlivých častí minimalizovaného funkcionálu, ktoré sú získané postupným menením hodnôt w_T a w_D a vyhodnotením zodpovedajúcej optimálnej prevádzky. Môžeme si všimnúť spomenuté limitujúce prípady $w_T > 0$,



Obr. 4.2: Optimálne trajektórie riadiacej veličiny pre diafiltráciu pri limitujúcom prietoku s minimálnym časom prevádzky (minimum time), s minimálnou spotrebou rozpúšťadla (minimum diluant), a ekonomickou účelovou funkciou (multi-objective optimal).



Obr. 4.3: Pareto front pre optimálnu prevádzku diafiltrácie pri limitujúcom prietoku s vyznačenými bodmi pre minimálny čas prevádzky (minimum time), minimálnu spotrebu rozpúšťadla (minimum diluant), a ekonomickú účelovú funkciu (multi-objective optimal).

Keďže je tento výraz nezávislý od α , môžeme vyvodiť viaceré všeobecné závery:

1. Ak budú odporové koeficienty konštantné, výraz (4.13) dá po integrácii

$$\left(\frac{c_{k,f}}{c_{k,0}}\right) \frac{R_l - 1}{R_k - R_l} \left(\frac{c_{l,f}}{c_{l,0}}\right) \frac{R_k - 1}{R_l - R_k} = \left(\frac{c_{m,f}}{c_{m,0}}\right) \frac{R_n - 1}{R_m - R_n} \left(\frac{c_{n,f}}{c_{n,0}}\right) \frac{R_m - 1}{R_n - R_m}. \quad (4.14)$$

Toto hovorí, že udaním koncových koncentrácií dvoch zložiek sú dané aj koncové koncentrácie ostatných zložiek. Vo všeobecnosti teda nebude existovať trajektória α , ktorá by spôsobila splnenie všetkých koncových podmienok z (4.11) so znamienkom rovnosti. Návrh optimálnej prevádzky teda môže byť zjednodušený ako splnenie koncových ohraňení so znamienkom rovnosti pre jednu makrozložku a jednu mikrozložku, zvýšenie resp. zníženie koncentrácie ktorých predstavuje limitujúci faktor pre separáciu.

2. V prípade premenlivých odporových koeficientov môže nastať situácia že všetky koncové koncentrácie môžu byť dosiahnuté so znamienkom rovnosti. Toto bude však predstavovať iba špeciálny prípad, pre ktorý dokonca môže striktné splnenie vyústiť do výrazného nárastu času vsádzky v porovnaní s prevádzkou, ktorá napr. prekoncentruje niektoré makrozložky. Ďalšou možnosťou je nájdenie optimálnej prevádzky z bodu 1. použitím stredných hodnôt odporových koeficientov.

Praktickú aplikáciu sme študovali (Jelemenský a kol., 2015) pre prípad jednej makrozložky ($N = 1$), kde membrána je absolútne nepriepustná k tejto zložke ($R_1 = 1$). Optimálna prevádzka sa dá nájsť pomocou postupu opísaného v predchádzajúcej kapitole a pre prípad konštantných odporových koeficientov je daná ako

1. V prvom kroku je riadiaca veličina saturovaná na minime (koncentračný režim) alebo na maxime až pokiaľ nie je splnená podmienka

$$S(c_1, \dots, c_M) = q + \sum_{i=1}^M c_i \frac{\partial q}{\partial c_i} = 0. \quad (4.15)$$

2. V druhom kroku sa použije singulárne riadenie

$$\alpha_{\text{sing}}(c_1, \dots, c_M) = \frac{\sum_{i=1}^M c_i R_i \left(\frac{\partial S}{\partial c_i}\right)}{\sum_{i=1}^M c_i \left(\frac{\partial S}{\partial c_i}\right)}. \quad (4.16)$$

3. Posledný krok opäť použije hraničné hodnoty riadiacej veličiny na splnenie koncových podmienok

$$c_1(t_f) \geq c_{1,f} \wedge c_2(t_f) \leq c_{2,f} \wedge \dots \wedge c_M(t_f) \leq c_{M,f}. \quad (4.17)$$

V prípade premenlivých koeficientov odporu membrány voči rozpusteným zložkám sa optimálna prevádzka výrazne nezmení. Opäť je možné určiť priebeh singulárneho riadenia na základe znalosti koncentrácií zložiek a pomocou prístupu využívajúceho nelineárne programovanie, tak ako bolo uvedené v predchádzajúcej kapitole, určiť časové dĺžky intervalov jednotlivých krokov prevádzky.

Jednou z možností smerovania budúceho výskumu je rozpracovanie podrobnejších prípadových štúdií, najmä takých ktoré vychádzajú z potrieb priemyselnej výroby, ako aj štúdium ďalších možností znižovania nákladov separácie, ako napríklad použitím ekonomického prístupu opísaného v tejto práci a v Jelemenský a kol. (2015).

Vsádzková diafiltrácia so zanášaním

V tejto kapitole predkladanej habilitačnej práce sa venujeme časovo-optimálnemu riadeniu vsádzkových diafiltračných membránových procesov v prítomnosti zanášania membrány. Zanášanie je zapríčinené ukladaním zložiek rozpustených vo filtrovanom roztoku v alebo na póroch membrány. Tento jav zapríčiňuje zníženie prietoku cez membránu a teda predĺženie celkového času separácie.

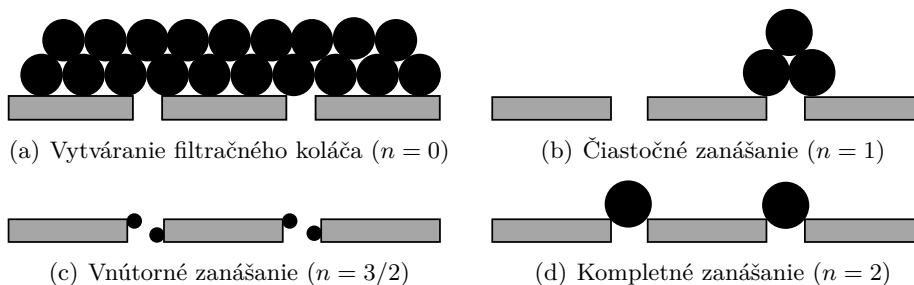
5.1 Modelovanie zanášania membrány

V roku 1982 bol odvodený univerzálny model zanášania, z ktorého sa dajú odvodiť modely pre štyri štandardné mechanizmy znázornené na Obr. 5.1. Tieto mechanizmy sa hlavne odlišujú v spôsobe, akým sa molekuly látok ukladajú v/na membráne a systematicky je možné ich rozlíšiť pomocou zavedenia premennej n , ktorej hodnota vyjadruje realizáciu konkrétneho mechanizmu (viď. Obr. 5.1).

Všeobecný model sa dá zapísať ako

$$\frac{dq}{dt} = -Kq^{3-n}, \quad q(t_0) = q_0, \quad (5.1)$$

kde K vyjadruje mieru zanášania a q_0 predstavuje počiatočný prietok cez nezanesenú membránu. Ak uvažujeme, že q_0 predstavuje prietok nezanesenej membrány $q_0(c_1, c_2)$, môže byť uvedená rovnica riešená explicitne a prietok cez zanášanú membránu je daný ako funkcia $q(t, K, n, q_0)$. Podrobnejšie sme o modelovaní zanášania pojednali v Jelemenský a kol. (2016b).



Obr. 5.1: Grafická reprezentácia štyroch štandardných mechanizmov zanášania.

5.2 Časovo-optimálna prevádzka diafiltrácie so zanášanim

Definícia problému minimalizácie času prevádzky pre jednu vsádzku diafiltračného procesu sa výrazne nelíši od problému (2.7) pre $w_T > 0$ a $w_D = 0$. Jedinou zmenou je matematické vyjadrenie prietoku cez membránu $q(t, K, n, q_0)$. Ako ukázala naša štúdia Jelemenský a kol. (2016b), optimálna prevádzka pre diafiltráciu v prítomnosti zanášania sa kvalitatívne nezmení od prevádzky odvodenej v kapitole 3. Toto vychádza z vlastností modelu prietoku cez membránu (5.1), ktoré sú v navrhnutej optimálnej stratégii implicitne zohľadnené.

Optimálna prevádzka je teda opäť, pre prípad hodnôt odporových koeficientov $R_1 = 1$ a $R_2 = 0$, určená explicitným nelineárnym spätnoväzbovým zákonom riadenia definovaným ako trojkroková stratégia:

1. Na prvom interval je riadiaca veličina na jednom zo svojich ohraničení až kým nie je splnená podmienka prepnutia

$$S(t, c_1, c_2, K, n) = q + c_1 \frac{\partial q}{\partial c_1} + c_2 \frac{\partial q}{\partial c_2} = 0. \quad (5.2)$$

2. Aplikuje sa singulárne riadenie

$$\alpha(t, c_1, c_2, K, n) = \frac{\frac{\partial S}{\partial c_1} c_1}{\frac{\partial S}{\partial c_1} c_1 + \frac{\partial S}{\partial c_2} c_2} + \frac{\frac{\partial S}{\partial t}}{\frac{c_1 A J}{c_{10} V_0} \left(\frac{\partial S}{\partial c_1} c_1 + \frac{\partial S}{\partial c_2} c_2 \right)}. \quad (5.3)$$

3. Posledný krok je určený obmedzeniami vzhľadom na koncový čas. Riadiaca veličina α nadobudne hodnotu na jednom zo svojich ohraničení.

Pre všeobecnejšie problémy, napr. ekonomicky optimálna prevádzka diafiltrácie, ľubovoľná závislosť odporových koeficientov na čase a koncentráciách rozpustených zložiek, atď., môžu byť použité postupy opísané v predchádzajúcich kapitolách.

5.3 Adaptívna časovo-optimálna prevádzka diafiltrácie

Veľmi častou situáciou pri nasadzovaní riadiacich stratégií založených na matematických modeloch je tzv. prítomnosť parametrickej neurčitosti, t.j. skutočné hodnoty niektorých parametrov použitých matematických modelov sa líšia od ich predpokladaných hodnôt. Keďže navrhnuté riadenie predpokladá poznanie hodnôt parametrov, riadenie, ktoré použije nesprávne (predpokladané alebo tzv. nominálne) hodnoty parametrov bude spravidla suboptimálne či dokonca neprípustné vzhľadom na obmedzenia.

Jednou z možností ako sa vysporiadať s touto situáciou je použitie adaptívneho riadenia, kde sú hodnoty parametrov odhadnuté pomocou porovnávania správania predpovedaného modelom a správania pozorovaného na základe meraných dát. Takýto mechanizmus prirodzene vyžaduje adaptáciu parametrov za behu procesu, kde sa ako limitujúcim faktorom často ukazuje schopnosť riešiť problém odhadovania parametrov v dostatočne krátkom časovom intervale.

Tieto úvahy nás viedli k realizácii štúdie Jelemenský a kol. (2016a), kde sme na odhadovanie parametrov modelu zanášania K a n , najkritickejších z pohľadu veľkosti parametrickej neurčitosti, použili váhovanú metódu najmenších štvorcov, váhovanú metódu najmenších

štvorcov s posúvajúcim sa horizontom, rekurzívnu metódu najmenších štvorcov a rozšírený Kalmanov filter. Posledné dve metódy sú tzv. rekurzívnymi odhadovačmi, použitie ktorých nevyžaduje riešenie optimalizačného problému počas behu procesu. Vykonaná bola analýza odhadovateľnosti parametrov, ktorej výsledky ukázali, že oba vyššie spomenuté parametre možno uspokojivo odhadovať iba ak sú súčasne merané prietok cez membránu q a jeho časová zmena dq/dt .

Výsledky dosiahnuté pri simulovanom adaptívnom riadení diafiltračného procesu potvrdili, že parametre K a n je možné odhadovať na základe navrhnutých meraných veličín. Navyše je možné navrhnúť rekurzívne odhadovače tak, že tieto konvergujú dostatočne rýchlo ku skutočným hodnotám odhadovaných parametrov a realizované riadenie je optimálne v praktickom zmysle. Z praktického pohľadu je treba dodať, že realizácia merania časovej zmeny prietoku cez membránu dq/dt nevyžaduje žiadne špeciálne meracie členy ale dá sa realizovať na základe aproximácii veličiny dq/dt (Jelemenský a kol., 2016a). Ďalším praktickým aspektom je navrhovanie rekurzívných odhadovačov, čo môže byť pre nelineárne systémy problematické. Toto predstavuje jednu z oblastí rozvíjanú v našom súčasnom výskume.

Závery

V tejto práci sme stručne predstavili problém vsádzkovej diafiltrácie a metódy, akými je možné zefektívniť prevádzku zovšeobecného diafiltračného procesu. Hlavnými prínosmi tejto práce sú:

1. Nájdenie časovo-optimálnej prevádzky a prevádzky s minimálnou spotrebou rozpúšťadla pre všeobecný vsádzkový diafiltračný proces.
2. Nájdenie ekonomickej prevádzky zohľadňujúcej súčasne čas vsádzky a spotrebu rozpúšťadla pre všeobecný vsádzkový diafiltračný proces.
3. Nájdenie časovo-optimálnej prevádzky pre všeobecný vsádzkový diafiltračný proces s viac-zložkovou separáciou.
4. Nájdenie časovo-optimálnej prevádzky pre všeobecný vsádzkový diafiltračný proces v prítomnosti zanášania membrány s priebežným odhadovaním parametrov matematického modelu zanášania.

Na odvodenie analytickej optimálnej prevádzky bola použitá metóda Pontrjaginovho princípu minima. Táto definuje v najbežnejších prípadoch trojkrovú stratégiu optimálnej prevádzky. Získané teoretické výsledky boli aplikované na rôznych prípadových štúdiách, ktoré boli prevzaté z literatúry. Ukázali sme tak široké možnosti nasadenia vyvinutej metodológie. Výsledky ukazujú, že prevádzkové stratégie tradične používané v priemysle nie sú vo všeobecnosti optimálne, a teda diskutované prínosy práce predstavujú veľký potenciál pre zlepšenie ekonomickej stránky výrobných procesov vo viacerých odvetviach chemického, biochemického a potravinárskeho priemyslu.

Budúce rozšírenia tejto práce môžu spočívať v nasledovných bodoch:

- analýza interakcii medzi zložitou modelom, mierou jeho parametrickej neurčitosti a prakticky dosiahnuteľnou optimálnosťou prevádzky vsádzkovej diafiltrácie,
- implementácia optimálnej prevádzky na laboratórnom membránovom procese,
- návrh a implementácia pokročilých metód odhadu parametrov,
- aplikácia teoretických zistení pri skúmaní rôznych pokročilých filtračných procesov a procesov využívajúcich membránovú separáciu.

Literatúra

- P. Aimar a R. Field. Limiting flux in membrane separations: A model based on the viscosity dependency of the mass transfer coefficient. *Chem. Eng. Sci.*, 47(3):579–586, 1992.
- L. T. Biegler, A. M. Cervantes a A. Wächter. Advances in simultaneous strategies for dynamic process optimization. *Chem. Eng. Sci.*, 57(4):575–593, 2002.
- B. Blankert, B. Betlem a B. Roffel. Dynamic optimization of a dead-end filtration trajectory: Blocking filtration laws. *Journal of Membrane Science*, 285(1-2):90 – 95, 2006. ISSN 0376-7388.
- A. E. Bryson, Jr. a Y. C. Ho. *Applied Optimal Control*. Hemisphere Publishing Corporation, 1975.
- V. Bui, L. Vu a M. Nguyen. Simulation and optimisation of direct contact membrane distillation for energy efficiency. *Desalination*, 259(1-3):29 – 37, 2010. ISSN 0011-9164.
- M. Cheryan. *Ultrafiltration and microfiltration handbook*. CRC press, Florida, USA, 1998.
- R. Field. Diafiltration under condition of quasi-constant membrane surface concentration. *Journal of Membrane Science*, 383(1-2):301 – 302, 2011. ISSN 0376-7388.
- M. Fikar, Z. Kovács a P. Czermak. Dynamic optimization of batch diafiltration processes. *Journal of Membrane Science*, 355(1-2):168–174, 2010.
- M. Jaffrin a J. Charrier. Optimization of ultrafiltration and diafiltration processes for albumin production. *Journal of Membrane Science*, 97:71–81, 1994.
- M. Jelemenský, D. Pakšiová, R. Paulen, A. Latifi a M. Fikar. Combined estimation and optimal control of batch membrane processes. *Processes*, 4(4):43, 2016a. ISSN 2227-9717.
- M. Jelemenský, R. Paulen, M. Fikar a Z. Kovács. Time-optimal operation of multi-component batch diafiltration. *Computers & Chemical Engineering*, 83:131 – 138, 2015. ISSN 0098-1354. 24th European Symposium on Computer Aided Process Engineering(ESCAPE).
- M. Jelemenský, A. Sharma, R. Paulen a M. Fikar. Time-optimal control of diafiltration processes in the presence of membrane fouling. *Computers & Chemical Engineering*, 91:343 – 351, 2016b. ISSN 0098-1354. 12th International Symposium on Process Systems Engineering & 25th European Symposium of Computer Aided Process Engineering (PSE-2015/ESCAPE-25), 31 May - 4 June 2015, Copenhagen, Denmark.

- C. D. Johnson a J. E. Gibson. Singular solutions in problems of optimal control. *IEEE Trans. Automatic Control*, 8(1):4–15, 1963.
- Z. Kovács, M. Fikar a P. Czermak. Mathematical modeling of diafiltration. V *Conference of Chemical Engineering*, 135–135. Pannonia University, Veszprem, 2009.
- J. Kuhn, R. Lakerveld, H. Kramer, J. Grievink a P. Jansens. Characterization and dynamic optimization of membrane-assisted crystallization of adipic acid. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 48(11):5360 – 5369, 2009.
- H. Lutz. Membrane filtration with optimized performance. 1996. Patent WO/1996/034679, proprietor: Millipore Investment Holdings Limited (Wilmington, DE, US).
- S. Ma, S. C. Kassinos a D. Kassinos. Direct simulation of the limiting flux: I. Interpretation of the experimental results. *Journal of Membrane Science*, 337(1-2):81–91, 2009.
- P. Ng, J. Lundblad a G. Mitra. Optimization of solute separation by diafiltration. *Separation Science and Technology*, 11(5):499–502, 1976.
- J. Odriozola, S. Beltrán, M. Dalmau, L. Sancho, J. Comas, I. Rodríguez-Roda a E. Ayesa. Model-based methodology for the design of optimal control strategies in mbr plants. *Water Science and Technology*, 2017. ISSN 0273-1223.
- P. Parvasi, A. K. Mostafazadeh a M. Rahimpour. Dynamic modeling and optimization of a novel methanol synthesis loop with hydrogen-permselective membrane reactor. *International Journal of Hydrogen Energy*, 34(9):3717 – 3733, 2009. ISSN 0360-3199.
- R. Paulen a M. Fikar. *Optimal Operation of Batch Membrane Processes*. Springer, 2016.
- R. Paulen, M. Fikar, G. Foley, Z. Kovács a P. Czermak. Optimal feeding strategy of diafiltration buffer in batch membrane processes. *Journal of Membrane Science*, 411-412:160–172, 2012. ISSN 0376-7388.
- R. Paulen, M. Fikar, Z. Kovács a P. Czermak. Process optimization of diafiltration with time-dependent water adding for albumin production. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 50(8):815–821, 2011a. ISSN 0255-2701.
- R. Paulen, G. Foley, M. Fikar, Z. Kovács a P. Czermak. Minimizing the process time for ultrafiltration/diafiltration under gel polarization conditions. *Journal of Membrane Science*, 380(1-2):148–154, 2011b. ISSN 0376-7388.
- R. Paulen, M. Jelemenský, M. Fikar a Z. Kovács. Optimal balancing of temporal and buffer costs for ultrafiltration/diafiltration processes under limiting flux conditions. *Journal of Membrane Science*, 444:87 – 95, 2013. ISSN 0376-7388.
- R. Paulen, M. Jelemenský, Z. Kovács a M. Fikar. Economically optimal batch diafiltration via analytical multi-objective optimal control. *Journal of Process Control*, 28:73 – 82, 2015. ISSN 0959-1524.
- L. S. Pontryagin, V. G. Boltyanskii, R. V. Gamkrelidze a E. F. Mishchenko. *The Mathematical Theory of Optimal Processes*. John Wiley & Sons, Inc., New York, 1962.

- M. Rahimpour a H. E. Behjati. Dynamic optimization of membrane dual-type methanol reactor in the presence of catalyst deactivation using genetic algorithm. *Fuel Processing Technology*, 90(2):279 – 291, 2009. ISSN 0378-3820.
- B. Srinivasan, S. Palanki a D. Bonvin. Dynamic optimization of batch processes: I. Characterization of the nominal solution. *Computers & Chemical Engineering*, 27(1):1–26, 2003.
- A. Takači, T. Žikić-Došenović a Z. Zavargó. Mathematical model of variable volume diafiltration with time dependent water adding. *Engineering Computations: International Journal for Computer-Aided Engineering and Software*, 26(7):857–867, 2009.
- E. Zondervan a B. Roffel. Dynamic optimization of chemical cleaning in dead-end ultra filtration. *Journal of Membrane Science*, 307(2):309 – 313, 2008. ISSN 0376-7388.

Curriculum Vitae

Radoslav Paulen

Dátum narodenia: 27. december 1984
Štátna príslušnosť: Slovenská republika
E-mail: radoslav.paulen@gmail.com

Vzdelanie

Bc. Potravinárska technológia a biotechnológia, Fakulta chemickej a potravinárskej technológie, Slovenská technická univerzita v Bratislave, 2006.

Ing. Chemické inžinierstvo a riadenie procesov, Fakulta chemickej a potravinárskej technológie, Slovenská technická univerzita v Bratislave, 2008

- *Ocenenia*: Ocenenie Slovenskej chemickej spoločnosti za najlepšiu diplomovú prácu
- *Aktivita*: Štúdium globálnej dynamickej optimalizácie na Lorraine Institute of Technology, Nancy, Francúzsko, november 2007 – apríl 2008

PhD. Automatizácia, Fakulta chemickej a potravinárskej technológie, Slovenská technická univerzita v Bratislave, 2012

- *Ocenenia*: Ocenenie za vynikajúci poster na konferencií PERMEA 2010
- *Aktivita*:
 - Štúdium globálnej optimalizácie na Lorraine Institute of Technology, Nancy, Francúzsko, september – november 2008
 - Štúdium optimálneho riadenia procesov na NTNU, Trondheim, Nórsko, máj – jún 2010
 - Štúdium dynamickej optimalizácie na Lorraine Institute of Technology, Nancy, Francúzsko, september 2011 – február 2012
 - Štúdium globálnej dynamickej optimalizácie na Imperial College London, Londýn, Spojené kráľovstvo, marec – august 2012

Zamestnanie

- 2008 – 2015 Vedecko-výskumný/pedagogický pracovník, Fakulta chemickej a potravinárskej technológie, Slovenská technická univerzita v Bratislave.
- 2012 – 2017 Vedecko-výskumný/pedagogický pracovník, Process dynamics and operations group, Department of Biochemical and Chemical Engineering, Technische Universität Dortmund.

Priložené publikované práce

- Paulen, R. – Foley, G. – Fikar, M. – Kovacs, Z. – Czermak, P.: Minimizing the process time for ultrafiltration/diafiltration under gel polarization conditions. *Journal of Membrane Science*, č. 1-2, zv. 380, str. 148–154, 2011.
- Paulen, R. – Fikar, M. – Kovacs, Z. – Czermak, P.: Process optimization of diafiltration with time-dependent water adding for albumin production. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, č. 8, zv. 50, str. 815–821, 2011.
- Paulen, R. – Fikar, M. – Foley, G. – Kovacs, Z. – Czermak, P.: Optimal feeding strategy of diafiltration buffer in batch membrane processes. *Journal of Membrane Science*, zv. 411-412, str. 160–172, 2012.
- Paulen, R. – Jelemenský, M. – Fikar, M. – Kovacs, Z.: Optimal balancing of temporal and buffer costs for ultrafiltration/diafiltration processes under limiting flux conditions. *Journal of Membrane Science*, zv. 444, str. 87–95, 2013.
- Paulen, R. – Jelemenský, M. – Kovacs, Z. – Fikar, M.: Economically optimal batch diafiltration via analytical multi-objective optimal control. *Journal of Process Control*, zv. 28, str. 73–82, 2015.
- Paulen, R. – Fikar, M.: *Optimal Operation of Batch Membrane Processes*, Springer, 2016.
- Jelemenský, M. – Paulen, R. – Fikar, M. – Kovacs, Z.: Time-Optimal Operation of Multi-Component Batch Diafiltration. *Computers & Chemical Engineering*, zv. 83, str. 131–138, 2015.
- Jelemenský, M. – Sharma, A. – Paulen, R. – Fikar, M.: Time-optimal control of diafiltration processes in the presence of membrane fouling. *Computers & Chemical Engineering*, zv. 91, str. 343–351, 2016.
- Jelemenský, M. – Pakšiová, D. – Paulen, R. – Latifi, M. A. – Fikar, M.: Combined Estimation and Optimal Control of Batch Membrane Processes. *Journal of Processes*, č. 4, zv. 4, 2016.