Celaya, Gto., 2007-ENERO-30

Depto. de Ingeniería Química
Oficio 011/2007

Asunto: Aprobación de Impresión Tesis de DOCTORADO

Dr. Eleazar M. Escamilla Silva
Jefe de Depto. de Ingeniería Química
Presente.

De acuerdo con la convocatoria hecha por esa Jefatura a su cargo, con el fin de determinar la Aprobación de Impresión del Proyecto de **DOCTORADO**, titulado:

"IDENTIFICACIÓN EN LINEA DE BIFURCACIONES EN SISTEMAS DINÁMICOS"

El (la) M.C CARLOS GONZÁLEZ FIGUEREDO, comunica a usted que esta Comisión Revisora de Tesis ha tenido a bien aprobar la impresión de este trabajo.

Lo anterior, para los efectos consiguientes.

Atentamente
"La Técnica por un México Mejor"

Dr. Ramiro Rico Martínez
Presidente

Dr. J. Francisco Javier Alvarado
Secretario

Dr. Pedro A. Quintana Hernández
Vocal

Dr. Alejandro Estrada Baltazar
Vocal Suplente

SECRETARIA DE EDUCACION PUBLICA
DIRECCION GENERAL DE
INSTITUTOS TECNOLOGICOS
DPTO. DE ING. QUÍMICA
TECNOLOGICO DE CELAYA

c.c.p. Sinodales
Expediente

Una nueva generación está naciendo, y con ella debe venir un nuevo orden mundial.

Eric Magnus Lensherr.

En el final, nada realmente termina.

Dr. Manhattan.

It's Clobbering Time!.

Ben Grimm.

Dedicatoria

A mi madre *Nora Lydia Figueredo Duque*, a ella le debo todo lo que soy.

AGRADECIMIENTOS

Quiero agradecer profundamente a todas aquellas personas que de alguna manera u otra tuvieron que ver con este trabajo. Sepan que su apoyo no pasó desapercibido.

A mi madre, Nora Lydia Figueredo Duque por el incondicional apoyo que me brinda en todo momento. Es un orgullo poder ser hijo tuyo.

Al Dr. Ramiro Rico no solo por dirigir esta tesis, sino por haberme brindado su apoyo a lo largo de estos cuatro años. Gracias por ser una parte importante en mi formación profesional y personal.

A los doctores Javier Alvarado, Pedro Quintana, Alejandro Estrada, Vicente Rico y Raúl González por sus aportaciones al presente trabajo.

Al Dr. Raymond Adomaitis por haberme abierto las puertas de la Universidad de Maryland para realizar una estancia de investigación.

Agradezco también a mi hermano, mi abuela, mis tíos, primos. Sé que siempre han estado al pendiente todo el tiempo.

A Ramón Peñaflor por soportarme y apoyarme en esta etapa. Sabes que cuentas conmigo

Al personal de apoyo del departamento de Ingeniería Química del ITC: Claudia, Irma, Judy y Judith quienes siempre han tenido un excelente trato hacia mi persona.

A la Lic. Norma de por su apoyo en los trámites con CONACyT.

A mis amigos: Blanquis cara de chango, Sr. Ipollas, Jordy, Ana Lilia, Rugi, Asilo, Infarto, Flowers, R2D2, la Nieta, Lilly, Montecristo, Pepe, Ruiz, Boni, Edson, Suricata, Claudia y

Lupita, Luigi, Alicia, Chivis, Nubia, Pinoch, Keroppi, Airam. Son todos muy especiales para mí.

A mis amigos y compañeros del posgrado: Gimel, Luis Hugo, Rocío, Adrián, Dalila, Pablo, Ulises, Florianne, Nelly, Erik, Adriana B., David, Elizeth, Jonatan, Claudia, Sergio, Lupita, Raúl, Artemis, Miguel V., Diana, Armando, Linda, Miguel L., Héctor, Mayra, Polo, don Armando y Adriana R. Espero no haber dejado a nadie afuera.

Finalmente a los organismos de los cuales recibí apoyo económico para el desarrollo de este proyecto:

Al Consejo Nacional de ciencia y Tecnología (CONACyT) por la beca de doctorado 163459 y por la beca mixta para la realización de una estancia de investigación en la Universidad de Maryland.

Al Consejo de Ciencia y Tecnología del Estado de Guanajuato (CONCYTEG) por el apoyo otorgado.

A la fundación Fulbright-García Robles por la beca para realizar una estancia de investigación en la Universidad de Maryland.

Resumen

Identificación en línea de bifurcaciones en sistemas dinámicos

Por: Carlos González Figueredo
Asesorado por: Ramiro Rico Martínez

Actualmente, la práctica de detección de bifurcaciones en simulaciones de tipo microscópico requiere de largos tiempos de simulación en la vecindad de soluciones marginalmente estables. De acuerdo a las ideas propuestas por Kevrekidis y col. (*J. of Chem. Phys.* 116, pp. 10083-10091, 2002), es posible obtener modelos de orden bajo que sirvan en la detección de bifurcaciones de simulaciones microscópicas. Este procedimiento consiste en cuatro etapas básicamente: el empleo de las trayectorias de las simulaciones, para obtener un modelo que permita la inferencia de la localización del punto de bifurcación; la determinación de condiciones de criticalidad específicas del tipo de bifurcación que se esté buscando; la estimación de la ubicación de la bifurcación en base al modelo obtenido y la condición de criticalidad; la inducción de una política de control capaz de llevar las trayectorias de las simulaciones microscópicas hacia la bifurcación. Llevando de manera robusta la etapa de identificación de la dinámica del sistema, se evitan las dificultades inherentes a largos tiempos de simulación necesarios en las metodologías tradicionales de detección de bifurcaciones.

Previamente se utilizaban modelos polinomiales en la etapa de identificación, sin embargo, el uso de estos modelos en línea no es recomendable para sistemas en los que el las coordenadas de los estados estacionarios tiene un cambio relativamente grande con respecto del parámetro de bifurcación, es decir, los polinomios no logran capturar adecuadamente el

comportamiento dinámico del sistema cuando la distancia entre dos estados estacionarios es muy grande para valores del parámetro cercanos.

En este trabajo se propone el uso de un modelo híbrido consistente en el acoplamiento de un esquema de redes neuronales artificiales acoplado a un estimador del tipo Kalman. Este modelo híbrido representará una opción de identificación robusta que puede ser utilizada en la detección de bifurcaciones de simulaciones microscópicas. También se hace la implementación de una política de control de horizonte recedente que es capaz de llevar al sistema hacia la bifurcación presentando trayectorias suaves, aumentando la robustez de la técnica.

Las modificaciones propuestas le proporcionan un mayor grado de robustez a la técnica de detección de bifurcaciones con respecto de su formulación original y su potencial se demuestra con la aplicación a la detección de bifurcaciones del sistema de oxidación catalítica de monóxido de carbono a dos diferentes niveles: un modelo de campo medio y simulaciones Monte Carlo cinéticas.

INDICE GENERAL

1. Capítulo 1: INTRODUCCION **1**

1.1. Justificación. 5

1.2. Objetivos. 9

1.3. Identificación de la dinámica del sistema mediante modelos de orden bajo. 9

1.4. Controlador de horizonte recedente. 10

1.5. Análisis de robustez. 11

1.6. Aplicabilidad a simulaciones microscópicas. 12

1.7. Hipótesis. 12

1.8. Organización del trabajo. 13

2. Capítulo 2: FUNDAMENTO TEÓRICO Y ANTECEDENTES **15**

2.1. Bifurcaciones. 15

2.2. Protocolo de detección de bifurcaciones. 19

2.3. Redes neuronales artificiales. 25

2.4. Filtros de Kalman. 34

2.5. Control de horizonte recedente. 41

2.6. Simulaciones cinéticas Monte Carlo 45

3. Capítulo 3: METODLOGÍA **50**

3.1. Modelo de referencia: Oxidación catalítica de CO. 50

3.1.1. Modelo de campo medio de la oxidación catalítica de CO. 51

3.1.2. Simulaciones cinéticas Monte Carlo de la oxidación catalítica de CO. 53

3.2. Identificación robusta de la dinámica del sistema. 54
3.2.1. Identificación mediante redes neuronales artificiales. 54
3.2.2. Filtro de Kalman modificado. 56
3.3. Control de horizonte recedente. 59
3.4. Simulaciones cinéticas Monte Carlo. 61

4. Capítulo 4: RESULTADOS DE LA ROBUSTIFICACIÓN 62
4.1. Modelos polinomiales vs. Modelos de redes neuronales. 62
4.2. Modelo híbrido de RNA-Kalman. 67
4.3. Control de horizonte recedente. 77
4.4. Conclusiones preliminares. 80

5. Capítulo 5: DETECCIÓN DE BIFURCACIONES EN SIMULACIONES MONTE CARLO 82
5.1. Identificación mediante modelo híbrido de RNA y filtro de Kalman. 83
5.2. Detección de bifurcaciones en simulaciones Monte Carlo. 83
5.3. Conclusiones preliminares. 92

6. Capítulo 4: CONCLUSIONES Y RECOMENDACIONES 94
6.1. Conclusiones. 94
6.2. Recomendaciones. 95

Bibliografía. 93

INDICE DE FIGURAS

2.1 Bifurcación de nodo punto de silla. 15

2.2 Bifurcación transcrítica. 18

2.3 Protocolo de detección de bifurcaciones. 24

2.4 Representación esquemática de una RNA de alimentación hacia delante con 4 capas. 29

2.5 Representación esquemática de una RNA recurrente con 4 capas. 30

2.6 Esquema de operación del filtro de Kalman. 40

3.1 Diagrama de bifurcación de θ_1 del sistema de oxidación catalítica de CO. 52

3.2 Diagrama de bifurcación de θ_2 del sistema de oxidación catalítica de CO. 52

3.3 Esquema de operación del Filtro de Kalman corregido con RNA's. 53

4.1 Diagramas de bifurcación de θ_1 de los modelos de RNA y polinomial para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos. 63

4.2 Diagramas de bifurcación de θ_2 de los modelos de RNA y polinomial para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos. 64

4.3 Diagramas de bifurcación de θ_1 de los modelos de RNA y polinomial para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos. 64

4.4 Diagramas de bifurcación de θ_2 de los modelos de RNA y polinomial para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos. 65

4.5 Series de tiempo para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos: a) condiciones iniciales $\theta_1=0.8$, $\theta_2=0.1$ y $\beta=0.6$, b) condiciones iniciales $\theta_1=0.6$, $\theta_2=0.3$ y $\beta=0.85$. 65

4.6 Series de tiempo para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos: a) condiciones iniciales $\theta_1=0.8$, $\theta_2=0.1$ y $\beta=0.6$, b) condiciones iniciales $\theta_1=0.6$, $\theta_2=0.3$ y $\beta=0.85$. 65

4.7 Diagramas de bifurcación de θ_1 del modelo híbrido de RNA con filtro de Kalman para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos. 70

4.8 Diagramas de bifurcación de θ_2 del modelo híbrido de RNA con filtro de Kalman para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos. 70

4.9 Diagramas de bifurcación de θ_1 del modelo híbrido de RNA con filtro de Kalman para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos. 71

4.10 Diagramas de bifurcación de θ_2 del modelo híbrido de RNA con filtro de Kalman para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos. 71

4.11 Series de tiempo para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos: a) condiciones iniciales $\theta_1=0.8$, $\theta_2=0.1$ y $\beta=0.6$, b) condiciones iniciales $\theta_1=0.6$, $\theta_2=0.3$ y $\beta=0.85$. 72

4.12 Series de tiempo para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos: a) condiciones iniciales $\theta_1=0.8$, $\theta_2=0.1$ y $\beta=0.6$, b) condiciones iniciales $\theta_1=0.6$, $\theta_2=0.3$ y $\beta=0.85$. 73

4.13 Convergencia hacia el punto de bifurcación para el estimado inicial $\beta=0.85$ (arriba), $\theta_1=0.6$ (en medio) y $\theta_2=0.1$ (abajo). 74

4.14 Convergencia hacia el punto de bifurcación para diferentes estimados iniciales, utilizando identificación polinomial (arriba), e híbrida (abajo). 75

4.15 Regiones de acción (límites de los estimados iniciales) que aseguran convergencia hacia el punto de bifurcación para una identificación polinomial (arriba), e híbrida (abajo). 75

4.16 Convergencia hacia el punto de bifurcación para el estimado inicial $\beta=0.85$ (arriba), $\theta_1=0.6$ (en medio) y $\theta_2=0.1$ (abajo). 79

4.17 Convergencia hacia el punto de bifurcación para diferentes estimados iniciales, utilizando control *dead-beat* (arriba), y control de horizonte recedente (abajo). 80

5.1 Diagramas de bifurcación de θ_1 del modelo de RNA de las simulaciones Monte Carlo. 85

5.2 Diagramas de bifurcación de θ_2 del modelo de RNA de las simulaciones

Monte Carlo. 86

5.3 Series de tiempo de la RNA y el modelo híbrido con condiciones iniciales $\theta_1=0.495$, $\theta_2=0.069$ y $\beta=4.0$. 87

5.4 Series de tiempo de la RNA y el modelo híbrido con condiciones iniciales $\theta_1=0.2$, $\theta_2=0.6$ y $\beta=1.0$. 88

5.5 Convergencia hacia la bifurcación θ_1 simulaciones Monte Carlo utilizando el protocolo de detección de bifurcaciones modificado. 89

5.6 Convergencia hacia la bifurcación θ_2 simulaciones Monte Carlo utilizando el protocolo de detección de bifurcaciones modificado. 90

5.7 Series de tiempo del protocolo modificado con condiciones iniciales $\theta_1=0.2$, $\theta_2=0.4$ y $\beta=5.0$. 91

5.8 Series de tiempo del protocolo modificado con condiciones iniciales $\theta_1=0.2$, $\theta_2=0.6$ y $\beta=1.0$. 92

INDICE DE TABLAS

4.1 Valores de los parámetros del filtro de Kalman. 69

4.2 Convergencia del protocolo para diferentes tamaños de horizonte de minimización del control de horizonte recedente. 78

5.1 Valores de los parámetros del filtro de Kalman. 85

NOMENCLATURA

General

x	Variable de estado.
p	Parámetro independiente.
r	Parámetro independiente.
t	Tiempo.
W	Peso de penalización.

Campo Medio

R	Constante del gas ideal.
T	Temperatura.
k_r	Constante de velocidad de reacción superficial.

RNA

g(Y)	Función de activación.
V	Salida de una neurona.
W	Peso o conexión entre neuronas.
Y	Salida de una neurona sin aplicación de función de activación.

Filtros de Kalman

A	Matriz que relaciona al estado x_k con su estado previo x_{k-1}.
B	Matriz que relaciona al estado x con la entrada de control.
H	Matriz que relaciona al estado x con la medición z.
K	Ganancia de Kalman
P	Covarianza del error de las predicciones.
Q	Covarianza del error inherente al proceso.
R	Covarianza del error inherente a las mediciones.
u	Entrada de control.

v	Ruido de la medición.
w	Ruido del proceso.
z	Medición

Control de horizonte recedente

Q	Matriz de pesos positiva definida.
R	Matriz de pesos positiva definida.
S	Matriz de pesos positiva definida.
u	Entrada de control.
y	Salidas del control.

Letras Griegas

Campo Medio

α	Constante de velocidad de adsorción de CO.
β	Constante de velocidad de adsorción disociativa de O_2. Usada como parámetro de bifurcación.
γ	Constante de velocidad de desorción de CO_2.
ε	Parámetro energético de interacciones laterales.
θ	Fracción cubierta de catalizador.

RNA

η	Velocidad de entrenamiento.
δ	Variable de método delta.
$\sigma(x)$	Función de activación sigmoidal.
θ	Umbral de cada neurona.

Control de horizonte recedente

Φ	Función de minimización.

Subíndices

1	Relaciona θ con la especie 1 (CO).
2	Relaciona θ con la especie 2 (O_2).

i,j,k,n	Contadores que determinan el número de estado del sistema
*	Relaciona θ con los espacios vacíos.

Superíndices

^	Le proporciona al estado *x* el carácter de predicción.
-	Denota tiempo anterior.

CAPITULO 1

INTRODUCCION

Los procesos químicos son sistemas con características dinámicas de amplio interés desde el punto de vista de control de procesos. La aplicación de teorías modernas de control a estos procesos ha beneficiado de manera importante la calidad de productos de amplio valor agregado. Es por esto que es de primordial importancia el estudio del comportamiento dinámico de los sistemas químicos, para el racional diseño de éstos y de sus controladores asociados.

El estudio del comportamiento dinámico de los proceso químicos no se trata de una tarea trivial, ya que éstos pueden presentar una variedad de comportamientos dinámicos debido a su naturaleza primordialmente no lineal [1]. Las principales características que se pueden observar como consecuencia de sus no-linelidades son:

1. La naturaleza de la respuesta depende de las alimentaciones y de las condiciones iniciales. Por ejemplo, un sistema no lineal puede cambiar de estable a inestable, o viceversa, si por ejemplo, el tamaño de paso de la alimentación se duplica.

2. La inestabilidad se puede encontrar frecuentemente en forma de ciclos límite. Estas oscilaciones tienen amplitud y frecuencia fijas, que pueden ser mantenidas por medio de un lazo cerrado de control, aún en el caso en el que las entradas sean cero. En

sistemas lineales, un estado transitorio crece teóricamente hasta una amplitud infinita, pero en un sistema no lineal, las no-linealidades limitan este crecimiento.

No solo la no linealidad puede afectar el comportamiento de un sistema, son los parámetros los que permiten una amplia variedad de comportamientos dinámicos. En el caso más simple, se presenta un punto simple atractor, al cual convergen todos las trayectorias, sin importar las condiciones iniciales. Aún cuando este tipo de atractor es el predominante en situaciones prácticas de ingeniería química, existen subespacios en el espacio de los parámetros del sistema donde existe la posibilidad de una variedad de comportamientos complejos incluyendo multiplicidades e inestabilidades. Esto ocurre aún para el simple caso de un reactor continuo de tanque agitado (RCTA). Este tipo de fenómenos ha sido objeto de estudio desde los años 50's, siendo el trabajo de Aris y Amundson [2], uno de los más importantes y de los primeros en fomentar el interés de los investigadores del área de la ingeniería de reactores en el estudio de bifurcaciones en las reacciones químicas.

El término bifurcación es ampliamente usado para describir los cambios cualitativos significativos que se presentan en la respuesta dinámica de un sistema, al ser variados los valores de los parámetros de los que el sistema depende [3]. En el estudio del comportamiento dinámico de un sistema, la dependencia de un sistema con respecto a sus parámetros de operación es usualmente presentada en la forma de diagramas de bifurcación. Con este fin, existen algunos sofisticados programas computacionales que permiten el seguimiento de diferentes puntos de bifurcación de varias codimensiones como AUTO [4],

CONTENT [5] y MATCONT [6]. Estos códigos son prácticos para modelos con complejidad baja a intermedia.

Debido al fuerte acoplamiento entre los procesos de transporte y la cinética de las reacciones, los cuales dependen en una manera no lineal de la temperatura y de la concentración, los reactores químicos son capaces de exhibir un complejo comportamiento de bifurcaciones, y representan un caso de estudio de interés. Tradicionalmente, estos procesos de reacción y de transporte son modelados mediante ecuaciones constitutivas como lo son los balances de masa y de energía. Los modelos obtenidos mediante esta metodología, pueden proporcionar un grado de entendimiento del comportamiento dinámico de estos procesos

Existen también otras alternativas para describir el comportamiento de sistemas químicos como son los métodos cuantitativos basados en descripciones microscópicas de los fenómenos que se presentan dichos sistemas, como la simulación molecular, en la que se conduce una serie de "experimentos" computacionales a nivel molecular, muchas configuraciones son generadas, y los promedios son usados para representar las "mediciones". Estos modelos se derivan también de primeros principios, y se basan en que existe un número infinito de configuraciones del sistema distintas con la misma probabilidad de que alguna de ellas ocurra [7]. Los estados obtenidos mediante este método son resultado de promediar los resultados de una muestra de configuraciones. Este tipo de modelos presentan una amplia gama de utilidad, ya que pueden ser utilizados para moléculas que varían en complejidad desde gases raros, hasta polímeros y metales.

Existen dos tipos principales de simulaciones moleculares: la dinámica molecular, que es un método determinista que consiste en la integración de las ecuaciones de movimiento; y la simulación Monte Carlo, que es un método estocástico que consiste en un promedio de ensambles de diferentes configuraciones.

Con la llegada de las computadoras rápidas, las simulaciones moleculares han venido a representar una opción popular para el análisis de diversos sistemas reactivos [7] y de reacciones superficiales [8,9], en las cuales se ha observado la formación de patrones, comportamiento oscilatorio en las velocidades de reacción, entre otros comportamientos En ciencia básica e ingeniería de materiales, involucrados en el diseño y fabricación de equipos electrónicos y optoelectrónicos, este tipo de simulaciones son particularmente valiosas, al ofrecer un entendimiento mecanístico fundamental de la respuesta de estos materiales a las fuerzas externas [10]. Estos métodos se usan también para la determinación de propiedades físicas y termodinámicas de diferentes compuestos complejos como medicamentos, polímeros, aditivos, etc., que poseen estructuras complejas para los cuales no existen suficientes datos disponibles de dichas propiedades [11]. Además de que esta técnica ha sido ampliamente asociada con la obtención de propiedades de sistemas en equilibrio, las simulaciones moleculares también pueden ser utilizadas para estudiar sistemas dinámicos [12].

Aún cuando los métodos de simulación microscópica son capaces de describir el comportamiento de sistemas como materiales complejos y procesos biológicos entre otros, tienen algunas limitaciones. Estas limitaciones se asocian principalmente a los largos tiempos

de simulación requeridos y a la insuficiencia de herramientas computacionales que realicen la caracterización de la respuesta dinámica de las simulaciones automáticamente. Siendo de gran importancia el estudio de bifurcaciones de los sistemas químicos, con el fin de delimitar zonas paramétricas en las que el comportamiento del sistema sea el deseado, es entonces necesario desarrollar herramientas capaces de llevar a cabo el análisis de bifurcaciones en simulaciones moleculares, de una manera automática y eficiente.

1.1 Justificación

Los modelos matemáticos, ya sean identificados en línea durante un experimento o derivados de primeros principios, constituyen la parte medular en la práctica del control moderno. Los modelos de procesos químicos y de transporte (balances de materia, energía y momentum) tradicionalmente toman la forma de ecuaciones diferenciales o integro-diferenciales algebraicas que describen variables macroscópicas como la concentración y la temperatura.

Una gran variedad de herramientas matemáticas y computacionales han sido desarrolladas a lo largo de los años, capaces de hacer el análisis del comportamiento dinámico, análisis de estabilidad y bifurcación, optimización, diseño y control de sistemas de los que se conoce una descripción macroscópica. Para muchos procesos de interés actual, la mejor descripción física disponible representa la proporcionada por simulaciones moleculares como la dinámica molecular, las simulaciones cinéticas Monte Carlo, teoría cinética basada en simulaciones tipo Lattice-Boltzmann, entre otras. Frecuentemente este tipo de descripciones opera a escalas bastamente diferentes de aquellas donde surgen las preguntas de

interés. Las herramientas usadas en el análisis de descripciones macroscópicas puede n ser también usadas para hacer la caracterización no lineal de simulaciones microscópicas, sc lo si se puede construir un equivalente macroscópico de éstas. Este equivalente macroscópic o de las simulaciones microscópicas puede ser propuesto considerando la formulación d(los avanzadores de paso grueso (coarse time-stepper) [13-15].

Los avanzadores de paso grueso proveen un puente entre descripciones estocástic:s de sistemas microscópicos y tareas macroscópicas como el análisis de estabilidad o de bifurcaciones, es decir los estados macroscópicos obtenidos mediante estos métodos, son simplemente usados en el procedimiento de identificación de bifurcaciones o estudi) de estabilidad de la respuesta del sistema. Este tipo de avanzadores de paso grueso tien(n el potencial de convertirse en un puente entre el modelamiento microscópico/estocástico y las técnicas de diseño de control como la retroalimentación lineal o control predictivo [16].

Los avanzadores de paso gruesos representan una metodología en dos niveles, que puede ser también aplicable en casos donde la simulación interna realiza un conjunto complejo de tareas, como integración dinámica en múltiples etapas que involucran ecuaci)nes diferenciales parciales a lo largo de todo un ciclo de operación, con decisiones disc·etas intermedias [17]. Los problemas involucrados en la detección de bifurcacione: en simulaciones microscópicas también se encuentran en la detección de bifurcacione; en experimentos de laboratorio con comportamiento dinámico no lineal [17,18].

Tradicionalmente, el trazado de los diagramas de bifurcación en simulaciones microscópicas, así como en sistemas experimentales, no es una tarea trivial, pues este tipo de sistemas no son tan fácilmente manipulables como los modelos matemáticos o computacionales. El procedimiento de trazado de estos diagramas en sistemas experimentales con respecto de un parámetro de operación (bifurcación) involucra establecer el parámetro de operación en un valor fijo y observar pasivamente como la dinámica del sistema se aproxima asintóticamente a un estado estacionario (punto de equilibrio, ciclo límite, etc.). El parámetro de operación es establecido en un nuevo valor y se deja estabilizar el sistema de nueva cuenta. Este procedimiento se repite hasta que se encuentra un cambio en el comportamiento cualitativo del sistema entre dos valores consecutivos del parámetro de operación, indicando un punto de bifurcación. El valor del punto de bifurcación se encuentra disminuyendo el intervalo de búsqueda entre estos dos valores.

Este procedimiento para encontrar los puntos de bifurcación de los sistemas tiene varias desventajas: al tratar de encontrar puntos marginalmente estables (valores propios con parte real igual o cercana a cero) se presentan estados transitorios muy largos, es decir, tiempos de estabilización muy grandes; en la detección de puntos de bifurcación como puntos de silla, o bifurcación de Hopf sub-crítica, el pasarse de un valor del parámetro de operación del lado "estable" al lado "inestable", involucra la pérdida local de soluciones estables, y así, el sistema tiende a moverse lejos de la vecindad que contenía el estado estacionario estable de interés.

Es debido a estas desventajas que también se presentan al hacer la identificación de puntos de bifurcación en simulaciones microscópicas, que es necesario desarrollar técnicas de detección automática de bifurcaciones, que sean robustas en su aplicación, y que logren una más eficiente caracterización de la respuesta dinámica de las simulaciones moleculares.

De acuerdo a las ideas propuestas originalmente por Anderson y col. [17] y Rico-Martínez y col [18], se pueden utilizar las simulaciones moleculares como ecuaciones de modelo para utilizarlas como referencia en la búsqueda de bifurcaciones. Este procedimiento requiere el uso de las trayectorias de las simulaciones moleculares para generar un modelo de orden bajo que permita la inferencia de la ubicación de la bifurcación. Si se lleva a cabo el paso de identificación de manera robusta, se puede construir una ley de control capaz de llevar a la simulación molecular hacia el punto de bifurcación. Este procedimiento involucra cuatro módulos principales:

I. Identificación de un modelo de orden bajo que represente la respuesta dinámica del sistema. Actualmente se utilizan modelos polinomiales motivados por la existencia de las formas normales de las bifurcaciones.

II. Estimación de la ubicación de la bifurcación por medio de la solución simultánea del modelo y de las condiciones críticas definidas en III.

III. Definición de las condiciones necesarias para la existencia de una bifurcación.

IV. Ley de control que define una política de variación del parámetro, que lleva y mantiene al sistema en el punto de bifurcación. Actualmente se utiliza una política de *dead-beat* (control en el mínimo posible número de pasos).

1.2 Objetivos

El objetivo general de este trabajo es obtener un algoritmo de detección de puntos de bifurcación que sea robusto, de manera que pueda ser utilizado para la detección de bifurcaciones en simulaciones microscópicas. Para esto se incorporará una técnica de identificación basada en el uso de estimadores del tipo de filtro de Kalman para corregir las predicciones arrojadas por un modelo de Red Neuronal Artificial (RNA). Estas predicciones son utilizadas como referencia para estimar la localización del punto de bifurcación. Se implementará también un controlador de tipo de horizonte recedente, que aplique sobre el sistema una política de variación del parámetro, de manera que lo lleve de una manera suave hacia el punto de bifurcación.

1.3 Identificación de la dinámica del sistema mediante modelos de orden bajo

La detección de bifurcaciones en simulaciones microscópicas es de gran relevancia, ya que, logrando una eficiente identificación de los puntos de bifurcación en este tipo de simulaciones, se puede lograr una eficiente caracterización de sistemas como los materiales complejos y reacciones químicas entre otros, y así determinar valores de los parámetros de operación para los cuales el desempeño del sistema es óptimo.

Como se mencionó anteriormente, el proceso de identificación mediante modelos de orden bajo juega un papel clave en la determinación de la robustez del protocolo de detección de puntos de bifurcación. En el presente proyecto de tesis se busca una técnica de identificación alternativa que sea robusta en su desempeño, para lograr una adecuada estimación de la ubicación de las bifurcaciones. Con este fin, se propone una representación alternativa basada en un modelo de Redes Neuronales Artificiales (RNA) entrenado fuera de línea, combinado con correcciones *en línea* basadas en un observador del tipo Kalman. Se eligen los modelos de RNA's debido a que pueden fungir como aproximadores universales de cualquier función continua y de sus derivadas.

A pesar de que las ventajas que ofrecen los modelos de RNA, su entrenamiento fuera de línea no les permite arrojar predicciones precisas a lo largo de una región extendida del parámetro. Esto nos representa un obstáculo para lograr una robusta identificación de la dinámica del sistema, y es necesario entonces modificar el algoritmo de identificación para que sea capaz de compensar los efectos de la predicción en línea. Con esta finalidad se propone una modificación a la estructura del modelo de RNA basada en la estructura lineal de los Filtros tipo Kalman, que permita obtener buenas aproximaciones en línea.

1.4 Controlador de horizonte recedente

En la modalidad actual del protocolo de detección de bifurcaciones, los modelos polinomiales utilizados para hacer la identificación de la respuesta dinámica del sistema son lineales con respecto del parámetro de bifurcación. Esta linealidad con respecto del

parámetro de bifurcación permite que la solución del problema de minimización involucrado en la política de control de "dead beat" sea la de una ecuación lineal en el parámetro.

Sin embargo, para la nueva estrategia de identificación basada en la corrección de una RNA mediante un estimador del tipo filtro de Kalman, la ventaja de linealidad deja de ser válida. Es por este motivo que se propondrá una nueva política de control para el protocolo de detección de bifurcaciones que sea capaz de llevar las trayectorias del sistema al punto crítico, es decir a la bifurcación, en la menor cantidad de iteraciones, tomando en cuenta las coordenadas del punto de bifurcación predichas con el nuevo modelo de Redes Neuronales Artificiales identificado.

Se propone el uso de una política de control de horizonte recedente, que representa una ley de control óptimo de horizonte finito que se actualiza al propagarse el tiempo, de modo que en todo tiempo tiene valores correctos de los parámetros. Esto representa una alternativa atractiva sobre todo en sistemas estocásticos como las simulaciones microscópicas donde los parámetros pueden variar con el tiempo.

1.5 Análisis de robustez

La robustez de la técnica juega un papel importante en la factibilidad de su uso en la detección de bifurcaciones de simulaciones microscópicas, debido a que estos sistemas no son invariantes en el tiempo y requieren de esquemas que reaccionen de mejor manera ante los cambios del sistema. Entonces, los resultados obtenidos mediante la versión modificada del protocolo de detección de bifurcaciones se compararán cualitativamente con los obtenidos

mediante su versión original, con el fin de evaluar los efectos en la robustez de la técnica obtenidos mediante estas modificaciones.

Con el fin de llevar a cabo esta comparación, se aplicarán las versiones original y propuesta del protocolo de detección de bifurcaciones a un sistema de referencia consistente en un modelo de campo medio de la oxidación catalítica de monóxido de carbono. Se utilizó este ejemplo en [14] como comparación con simulaciones Monte Carlo, y es esta la razón por la que es elegido como referencia en este trabajo.

1.6 Aplicabilidad a simulaciones microscópicas

Se demostrará el potencial de este procedimiento para la caracterización de la respuesta dinámica de simulaciones microscópicas, aplicándolo a la detección de bifurcaciones en simulaciones cinéticas Monte Carlo. Esto se logrará acoplando el protocolo de detección de puntos de bifurcación a una rutina de simulación de tipo Monte Carlo del sistema de referencia, es decir la oxidación catalítica de monóxido de carbono (CO) [16].

1.7 Hipótesis

El desarrollo del presente trabajo se basa en las siguientes hipótesis:

I. El empleo de modelos de Redes Neuronales Artificiales (RNA) acoplado con un esquema de filtro de Kalman puede fungir como los modelos de bajo orden necesarios en el módulo de identificación del protocolo de detección de bifurcaciones.

II. Las predicciones arrojadas por los modelos de RNA acopladas con el filtro de Ka man mejorarán notablemente la robustez de la identificación en línea de la dinámic: del sistema, y por lo tanto, del protocolo de detección de bifurcaciones.

III. El uso de una ley de control de horizonte recedente como política de variació: del parámetro puede llevar de una manera suave al sistema al punto de bifurca:ión, evitando cambios bruscos que puedan alejarlo de la región de interés.

IV. El protocolo de detección de bifurcaciones modificado por la implementación d: las técnicas de identificación y de control antes mencionadas tendrá un desem:eño robusto, de manera que podrá ser utilizado en la caracterización de simulaci:nes cinéticas Monte Carlo.

1.8 Organización del trabajo

En el Capítulo 2 de esta tesis se presenta una breve introducción descriptiva d: las bifurcaciones y del procedimiento utilizado para su detección, así como de las herrami:ntas utilizadas para este fin, como son las redes neuronales artificiales (RNA), filtros de Kal nan, control de horizonte recedente y de los principios de las simulaciones cinéticas Monte Carlo. Los casos de estudio y metodología a seguir en este trabajo son descritos en el Capítulo 3. También en este capítulo se presentan los detalles de la alternativa de identificación basac a en RNA's y filtros de Kalman propuesta y de la política de control de horizonte recedente. En el Capítulo 4 se muestran los resultados obtenidos al aplicar el protocolo de detecció: de bifurcaciones sobre el modelo de referencia, después de la modificación de las etap:s de

identificación. También en esta sección se muestra una comparación entre el desempeño de la versión actual y la propuesta del protocolo. Los resultados obtenidos de la aplicación de la versión propuesta del protocolo de detección de bifurcaciones para la caracterización de simulaciones microscópicas se muestran en el Capítulo 5. Finalmente, en el Capítulo 6 se exponen las conclusiones y recomendaciones obtenidas de la experiencia de este trabajo.

CAPITULO 2

FUNDAMENTO TEÓRICO Y ANTECEDENTES

El presente trabajo trata sobre la detección de bifurcaciones en simulaciones microscópicas, por lo que en este capítulo se presenta una breve discusión sobre bifurcaciones en sistemas dinámicos. También se presenta a detalle el protocolo de detección de bifurcaciones estudiado y las herramientas que éste emplea para completar su labor, como son las Redes Neuronales Artificiales (RNA), los filtros de Kalman y las leyes de control de horizonte finito. Por último se presenta una breve introducción a las simulaciones cinéticas Monte Carlo.

2.1 Bifurcaciones

Bajo ciertas condiciones de operación, los sistemas químicos pueden presentar diversos comportamientos dinámicos que van desde puntos de equilibrio únicos, multiplicidad de estados estacionarios, ciclos límite estables e inestables y hasta comportamiento caótico. Estos comportamientos pueden ser clasificados definiendo las diversas posibilidades de acuerdo a los valores de los parámetros del sistema, utilizando diagramas en el espacio de los parámetros, llamados diagramas de bifurcación.

Una bifurcación se presenta cuando el retrato fase del sistema cambia su estructura topológica al variar los parámetros. Los cambios en las propiedades cualitativas de los

sistemas dinámicos pueden ser tan variados como los diferentes tipos de bifurcaciones que existen.

La primer y más simple clase de bifurcación es la *bifurcación de nodo-punto silla (saddle-node)*: este es el mecanismo básico por el cual los puntos fijos o estacionarios son creados o destruidos. En este caso, al ser variado el parámetro, dos puntos fijos se mueven hacia sí, chocan y se aniquilan mutuamente. Un ejemplo clásico de este tipo de bifurcación se presenta en el siguiente sistema dinámico de primer orden:

$$dx/dt = r + x^2, \tag{2.1}$$

donde r es un parámetro, el cual puede ser positivo, negativo o cero. Cuando r es negativo, existen dos puntos fijos, uno estable y uno inestable. En la Figura 2.1 se muestra como al aproximarse r a cero desde los valores negativos, la parábola sube y los dos puntos fijos ($dx/dt = 0$) se mueven hacia sí mismos. Cuando $r = 0$, los puntos fijos se unen en un solo punto fijo marginalmente estable. Al tomar r valores mayores a cero, desaparecen los dos puntos fijos.

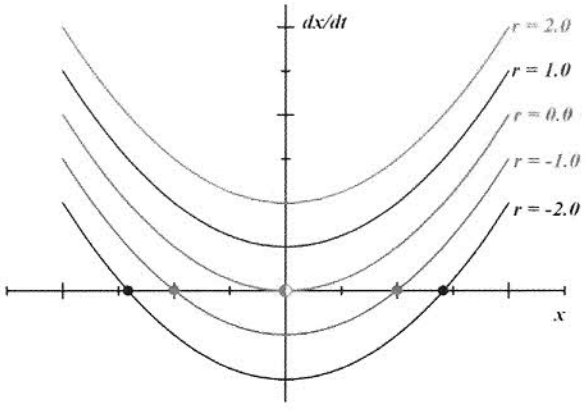

Fig. 2.1 Bifurcación de nodo punto de silla.

De cierto modo, este ejemplo es representativo de todas las bifurcaciones de punto silla, es caso prototipo, es decir, cerca de una bifurcación de este tipo, los sistemas dinámicos se comportan de manera similar. A estos ejemplos prototipo se les conoce convencionalmente como *formas normales* [19].

Otro tipo de bifurcación clásica es la *bifurcación transcrítica*: existen ciertas situaciones donde se presenta un punto fijo para cualquier valor de los parámetros y nunca puede ser destruido, sin embargo, este punto fijo puede cambiar su estabilidad al variar los parámetros. La forma normal, o ecuación prototípica de una bifurcación transcrítica es:

$$\dot{x} = rx - x^2, \tag{2.2}$$

donde r es un parámetro. En la Figura 2.2 se muestra como este sistema presenta un punto fijo para $x^* = 0$ para todo valor de r. Para $r < 0$, existe un punto fijo inestable a $x^* = r$ y un punto fijo estable en $x^* = 0$. Al aumentar el valor de r, el punto fijo inestable se aproxima al origen y ambos puntos se unen cuando $r = 0$. Finalmente, cuando $r > 0$, el origen se vuelve inestable, y el punto fijo $x^* = r$, es ahora estable.

El último tipo de bifurcación que trataremos aquí es la bifurcación de Hopf. Si un sistema de dimensión dos tiene solo un punto fijo, es posible que este pierda estabilidad al variar los parámetros. Los valores propios de la matriz Jacobiana del sistema evaluada en dicho punto fijo dan la estabilidad del punto fijo. Cuando ambos valores propios tienen parte real negativa, el punto fijo es estable, y eso puede suceder ya sea que los valores propios sean reales puros o que sean un par complejo conjugado. Es necesario que uno o los dos valores propios crucen a la mitad derecha del plano complejo para desestabilizar al punto fijo. El

caso en que los dos valores propios pasan al lado derecho del plano complejo simultáneamente corresponde a este tipo de bifurcación.

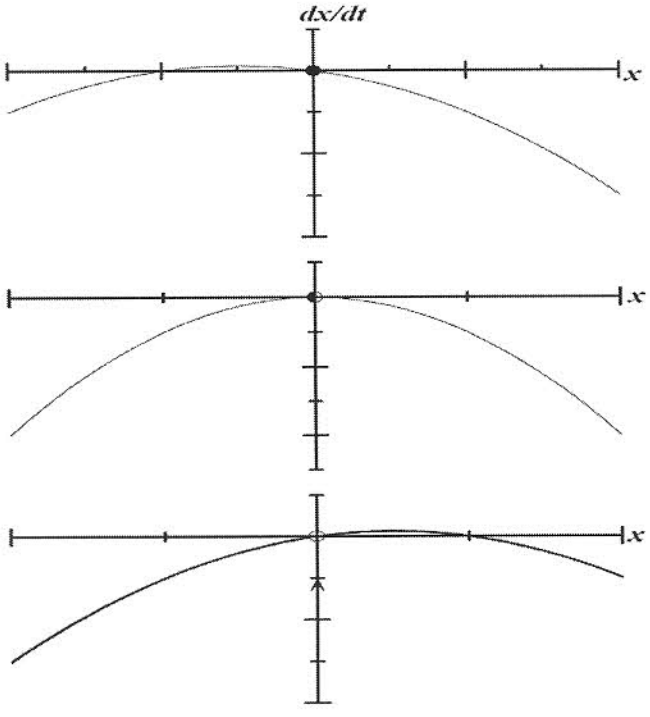

Fig. 2.2 Bifurcación transcrítica.

Supongamos que se tiene un sistema físico que se estabiliza en un punto fijo mediante oscilaciones exponencialmente decrecientes. Supongamos también que la velocidad de decremento depende del parámetro de control μ. Si esta velocidad de decremento disminuye hasta el punto en que se convierte en crecimiento para un valor crítico de los parámetros μ_c, el estado de equilibrio perderá estabilidad. En muchos casos, el resultado es una oscilación sinusoidal de pequeña amplitud alrededor del punto fijo desaparecido. Entonces decimos que se obtuvo una bifurcación de Hopf supercrítica. Existe también el caso subcrítico, donde al

pasar la bifurcación, las trayectorias del sistema *brincan* a otro atractor lejano, que puede ser otro punto fijo, otro ciclo límite, al infinito, un atractor caótico, etc.

2.2 Protocolo de detección de bifurcaciones

La importancia de una adecuada detección de bifurcaciones en sistemas químicos, reside en poder definir ventanas en el espacio de los parámetros donde podemos asegurar que se presentará el comportamiento de interés. Uppal y col. [20,21], fueron de los precursores del análisis de bifurcaciones para caracterizar el comportamiento dinámico de un reactor continuo de tanque agitado (RCTA). Generalmente, las técnicas de detección de bifurcaciones requieren la resolución simultánea de las ecuaciones del modelo y de un conjunto de condiciones que definen cada bifurcación específicamente. Los límites de las regiones de los parámetros de diagramas de bifurcación pueden ser determinados también, utilizando teoría de singularidades sobre alguno de los parámetros, para el cual el sistema ha identificado que presenta una bifurcación. Este procedimiento se explica más extensamente en [22]. Nuevas metodologías consisten en un grado de combinación de las técnicas de continuación y teoría de singularidades [23].

En [17] se introdujo un protocolo para la detección eficiente de bifurcaciones en sistemas experimentales. Este procedimiento de identificación de puntos de bifurcación consiste en la construcción de un sistema aumentado donde el sistema original es acoplado a una ley de control del parámetro impuesta externamente. Esta ley de control está basada en la estimación de condiciones críticas y en ideas de control por retroalimentación. Este nuevo

sistema tiene un punto de equilibrio estable en donde el sistema original solo presentaba un punto de bifurcación marginalmente estable.

Este protocolo involucra cuatro módulos principales, la acción de estos cuatro módulos interconectados definen la ley de control que producen la variación del parámetro de operación. En el nuevo sistema aumentado (experimento acoplado a la computadora), el parámetro de bifurcación es ahora un estado dinámico del sistema y tiene comportamiento dinámico inducido por la computadora. La aplicación repetitiva de este algoritmo lleva los estados del sistema al punto de bifurcación del sistema original.

El primer módulo consiste en la identificación en línea de un modelo de orden pequeño del sistema, a partir de datos medidos. Al suponer que el sistema se encuentra en la vecindad de un punto de bifurcación local, es posible capturar la dinámica del sistema en un modelo de bajo orden. El uso de esta aproximación es motivado por la existencia de una forma normal para la bifurcación. El modelo discreto utilizado para la identificación del sistema toma la forma de un polinomio de grado bajo en función de las variables medidas y del parámetro de bifurcación basándose en el modelo de series de Taylor en la vecindad del punto de bifurcación y en teoría de variedades centrales y formas normales. El polinomio utilizado es de tercer grado con respecto de los estados y lineal con respecto al parámetro debido a que las formas normales de las bifurcaciones que se buscan tienen la forma de un polinomio de un grado máximo igual a tres. El modelo polinomial tiene la siguiente forma general:

$$
\begin{aligned}
&x(k+1) \equiv F[x(k); p(k)]; \\
&i = 1,...,n, \\
&x_i(k+1) \equiv F_i[x(k); p(k)]; \\
&x_i(k+1) = a_i + \sum_{j=1}^{n} b_{i,j} x_j(k) + c_i p(k) + \sum_{j=1}^{n}\sum_{l=1}^{n} d_{i,j,l} x_j(k) x_l(k) + \sum_{j=1}^{n} e_{i,j} x_j(k) p(k) \\
&\qquad + \sum_{j=1}^{n}\sum_{l=1}^{n}\sum_{m=1}^{n} f_{i,j,l,m} x_j(k) x_l(k) x_m(k)
\end{aligned}
\tag{2.3}
$$

Es posible también utilizar polinomios de un grado mayor en la identificación de la dinámica del sistema, más esto no hace sentido desde el punto de vista de formas normales. Además, el uso de polinomios, incluso de grado alto, no es recomendable para llevar a cabo la identificación de sistemas en regiones extendidas del parámetro para las cuales las coordenadas de los puntos estacionarios tienen cambios grandes al cambiar el valor del parámetro de bifurcación. Una opción para obtener una solución parcial a este problema es la aplicación de una señal de excitación persistente al actuador (señal del parámetro). Esta señal de excitación previene al sistema de alcanzar estados estacionarios para los cuales las mediciones son prácticamente constantes, y así evitar que la matriz usada en los cálculos de la identificación esté mal condicionada, y que el modelo aproximado se deteriore. Al aplicar esta señal de excitación persistente, el sistema se encuentra siempre en movimiento, permitiendo la recolección de datos con información dinámica relevante, que resulta en modelos más precisos.

El segundo módulo utiliza el modelo identificado obtenido por el primer módulo, para estimar la ubicación del punto de bifurcación en el espacio de los estados del sistema aumentado (estados × parámetros). Este módulo es una etapa computacional que se basa en la información proporcionada por una función de prueba que es diferente para cada tipo de bifurcación, y que involucra la solución simultánea de las ecuaciones de estado estacionario

del modelo identificado junto a la condición de criticalidad correspondiente al tipo de bifurcación buscada. Las condiciones de criticalidad se encuentran descritas más adelante en el tercer módulo del protocolo de detección de bifurcaciones.

La ubicación de los puntos de bifurcación es estimada utilizando algoritmos de solución de ecuaciones como el de Newton-Rhapson.

El tercer módulo define las condiciones que se necesitan para la identificación de cada tipo de bifurcación. Por ejemplo para una bifurcación de nodo-punto silla la condición está dada por $Det[\nabla_x F(x;p) - I] = 0$, donde I es una matriz identidad de dimensión n y $\nabla_x F$ es el Jacobiano del mapa del modelo identificado. Para una bifurcación de Hopf (no -degenerada y de dos dimensiones) se usa $Det[\nabla_x F(x;p)] - 1 = 0$. Nótese que estas condiciones se aplican en mapas correspondientes a la naturaleza del modelo discreto en el tiempo.

El cuarto y último módulo utiliza el valor crítico estimado del parámetro de bifurcación para desarrollar una política de variación del parámetro, que va a dirigir y mantener los estados del sistema aumentado cerca del punto de bifurcación. Para que exista este protocolo de variación se asume implícitamente controlabilidad del sistema aumentado, o al menos del modelo de bajo orden estimado. Este protocolo provee la ley de control de la nueva variable dinámica, es decir, el parámetro de bifurcación del sistema original. La dinámica de esta variable es impuesta por la computadora acoplada al experimento en tiempo real y tiene una motivación matemática en lugar de física. En esta etapa crítica se pueden utilizar diferentes leyes de control por retroalimentación para llevar los estados del sistema aumentado a la vecindad del punto de bifurcación.

Las leyes de control utilizadas, tienen que tomar en cuenta el carácter local del modelo de bajo orden estimado para poder tener un desempeño adecuado. Varios problemas prácticos se pueden presentar al momento de aplicar algunas leyes de control. Esto debido al carácter local del modelo identificado y la señal de excitación continua, aplicada al parámetro. Además, la acción de control debe tener una respuesta rápida, casi instantánea en tiempo real. Con estas restricciones en mente, se utiliza una política de control que minimiza la distancia al punto crítico en la próxima iteración, penalizando variaciones grandes del parámetro. Este protocolo resulta de:

$$\min_{p(k)}\left\{\sum_{i=1}^{n}\left(x_i(k+1)-x_{i,cr.}\right)^2+W\left(p(k)-\hat{p}_{cr}\right)^2\right\}, \qquad (2.4)$$

donde W es un peso de penalización. Nótese que, debido a que el modelo identificado es lineal en el parámetro, la solución de este problema de minimización es la de una ecuación lineal en p. En presencia de errores de modelado, si se empieza lejos del punto de bifurcación, el control podría alejar más a los estados del sistema, en lugar de acercarlos. La introducción del peso W, provee un mecanismo de moderar acciones de control excesivo.

Para evitar variaciones grandes en el parámetro de control que puedan llevar al sistema fuera del rango donde el control es físicamente alcanzable, se procede a acotar los valores que pueda tomar el parámetro, es decir, se satura el controlador. Si la política de variación del parámetro los lleva más allá de estos límites, el parámetro toma el valor del límite que ha sido sobrepasado. Así, utilizando el protocolo de detección de bifurcaciones descrito, se pueden evitar largos periodos de estabilización asociados a los sistemas de lazo abiertos cercanos a puntos críticos. Este esquema es capaz de llevar al sistema aumentado hacia el estado

estacionario, aún a pesar de leves sobretiros en el valor crítico del parámetro de bifurcación. En la Fig. 2.3 se muestra un diagrama esquemático de dicho protocolo.

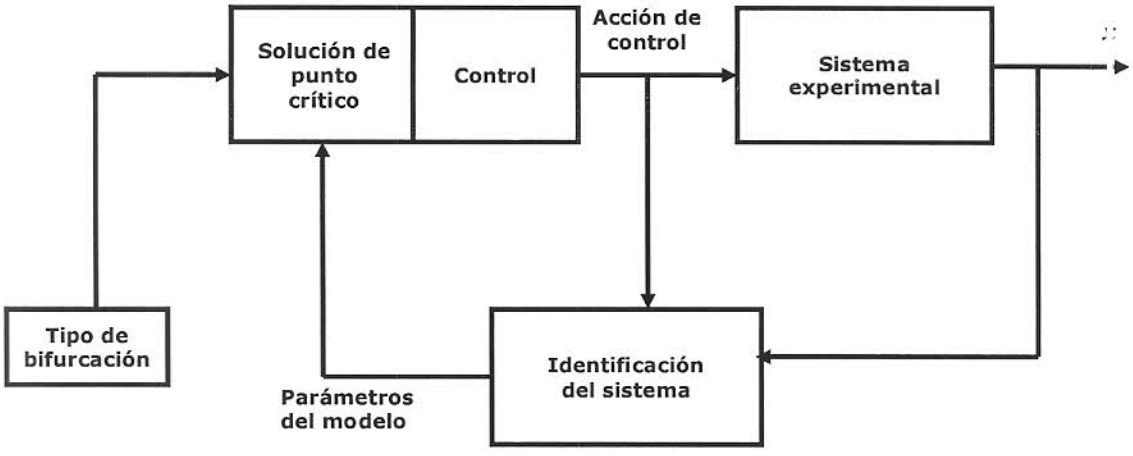

Fig. 2.3 Protocolo de detección de bifurcaciones.

En [18] se demostró la factibilidad de la aplicación de este protocolo a un experimento analógico. Sin embargo, también se reconoce que la identificación mediante modelos de bajo orden juega un papel clave en la determinación de la baja robustez del procedimiento.

Como se mencionó anteriormente, para aplicar el protocolo de detección de bifurcaciones descrito, es necesario obtener un modelo de orden bajo que describa la respuesta dinámica de un sistema "experimental" no lineal. El uso de modelos polinomiales no es recomendable debido a que su pobre desempeño restringe fuertemente la robustez del protocolo, al imponer el uso de señales de excitación que dificultan el desempeño del control por retroalimentación. Así, la falta de robustez del protocolo de detección de bifurcaciones se debe principalmente a la deficiencia de la técnica de identificación del modelo local, lo cual se refleja directamente en el tamaño de la vecindad del punto de bifurcación donde se pueden

ubicar las condiciones iniciales de la búsqueda del punto de bifurcación y en el número de iteraciones necesarias para alcanzar convergencia. También, el uso de señales de excitación en las mediciones utilizadas para la identificación del modelo polinomial afecta el desempeño del controlador que lleva las trayectorias del sistema al punto crítico del sistema, es decir, al punto de bifurcación. Esta falta de robustez de la técnica restringe fuertemente la factibilidad de su uso para la detección de bifurcaciones de simulaciones moleculares.

2.3 Redes Neuronales Artificiales

Como se mencionó anteriormente, la eficiencia del modelo identificado tiene una importancia clave para el correcto desempeño del protocolo de detección de bifurcaciones Es por esto que se debe proponer un mejor modelo que la alternativa de modelos polinomiales, que logre hacer una representación adecuada del sistema. Muchos de los sistemas de interés en Ingeniería Química son inherentemente no lineales. El comportamiento dinámico complejo que se presenta frecuentemente, puede ser analizado, caracterizado y predicho exitosamente usando Redes Neuronales Artificiales (RNA's) para construir modelos dinámicos empíricos y semiempíricos [24-28].

Una red neuronal se define básicamente como una colección de unidades o elementos de proceso (neuronas), que se comunican entre sí mediante conexiones, denominadas axones. Estas estructuras son en esencia modelos matemáticos simples que definen una función $f : X \to Y$, el cual puede exhibir un comportamiento global complejo, que está determinado por las conexiones entre los elementos de proceso y los parámetros de los elementos. La

palabra red en el término red neuronal artificial, surge debido a que la función $f(x)$ está definida como la composición de otras funciones $g_i(x)$, la cual puede ser también definida como una composición de otras funciones.

La inspiración original para el desarrollo de la técnica, fue el análisis del sistema nervioso central y de las neuronas (con sus axones, dendritas y sinapsis), que constituye uno de sus elementos de proceso más significativos. En un modelo de redes neuronales, los nodos (neuronas) simples se conectan para formar una red de neuronas, de ahí el nombre "redes neuronales". Una red neuronal no tiene propiedades adaptivas por si misma, su uso práctico es el que le proporcionan algoritmos diseñados para modificar la fuerza (pesos) de las conexiones en la red, para producir la señal deseada.

Las implementaciones modernas de software de Redes Neuronales Artificiales (RNA's) inspiradas por su análogo biológico han sido desplazadas por implementaciones más prácticas basadas en estadística y técnicas de procesamiento de señales. En algunos de estos sistemas, las RNA's son usadas como componentes de sistemas más grandes que combinan elementos adaptable y no adaptables.

Probablemente la mayor ventaja de una RNA es su habilidad para ser usada como una función arbitraria que funciona como un mecanismo de aproximación, el cual "aprende" a partir de datos observados, es decir, la utilidad de las RNA's reside en el hecho de que pueden ser usadas para inferir una función a partir de observaciones. Esto es particularmente útil en aplicaciones donde la complejidad de los datos hace que el desarrollo manual de dicha

función sea impráctico. Las RNA's tienen usos muy diversos, los cuales pertenecen a alguna de las siguientes categorías generales:

- Aproximación de una función o análisis de regresión que incluye predicción de series de tiempo y modelamiento.
- Clasificación, incluyendo reconocimiento de secuencias y patrones.
- Procesamiento de datos, incluyendo filtrado, agrupamiento y compresión.

Ejemplos de estas tareas incluyen la identificación y control, toma de decisiones en juegos (backgammon, ajedrez, etc.), reconocimiento de patrones (sistemas de radar, reconocimento de rostros, identificación de objetos, etc.), reconocimiento de secuencias (gestos, patrones de habla, reconocimiento de texto escrito), diagnóstico médico, aplicaciones financieras, filtrado de "e-mail spam", etc.

Para definir una RNA, es necesario especificar su arquitectura, es decir, en adición al número de neuronas, debemos especificar un esquema de conectividad (cómo se conectan las neuronas entre sí), una regla de activación (cómo se combinan las entradas de una neurona para generar su respuesta) y una regla de aprendizaje (una regla para actualizar el "peso" de una conexión entre neuronas). En un gran número de aplicaciones de redes neuronales se hace uso de dos tipos básicos de arquitecturas: RNA's de alimentación hacia delante y RNA's recurrentes.

Las redes de alimentación hacia adelante frecuentemente se llaman redes de propagación hacia atrás. La conectividad de estas redes está establecida de manera que cada

neurona distribuye su respuesta a todas las neuronas de la capa inmediata superior como se muestra en la Fig. 2.4. La primer capa en una RNA de alimentación hacia adelante, se compone de neuronas cuya única función es la de distribuir sus entradas a la capa inmediata superior. Las neuronas en las capas intermedias o capas "ocultas" calculan su salida como una función escalar no-lineal de una suma pesada de sus entradas más una variable llamada umbral. La forma de la función no lineal empleada puede variar de acuerdo a las aplicaciones y se le denomina función de activación. Una de las formas más comunes de la función de activación para neuronas en las capas ocultas es la sigmoidal:

$$g(Y) = \frac{1}{2}\left(1 + \tanh(Y)\right) = \frac{1}{1+e^{-Y}} \qquad (2.5)$$

La figura 2.4 presenta una representación esquemática de una red de alimentación hacia delante simple con una sola entrada y una sola salida y dos neuronas en cada una de las capas ocultas. Las neuronas de la capa de salida producen como su salida una combinación lineal de sus entradas más un umbral $v_i = g\left(\sum w_{ij} v_j + \theta_i\right)$, donde v_i es la salida de la neurona i, w_{ij} es la fuerza de la conexión entre la neurona i (capa superior) y la neurona j (capa inferior), a w_{ij} también se le denomina "peso". El umbral de la neurona i se denota θ_i.

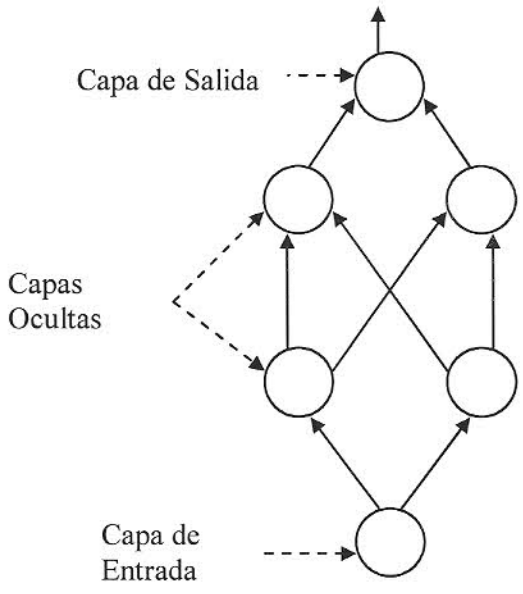

Fig. 2.4 Representación esquemática de una RNA de alimentación hacia delante con 4 capas.

El segundo tipo común de redes neuronales se denomina redes recurrentes, este tipo de redes presenta una estructura muy similar a las redes de alimentación hacia delante sin embargo ahora se permite la existencia de lazos de retroalimentación (laterales y hacia atrás). La figura 2.5 ejemplifica una red recurrente usando el mismo arreglo de neuronas usado para ejemplificar una red de alimentación hacia delante, pero ahora con algunas conexiones (recurrentes) adicionales, lo que la convierte en una red sustancialmente diferente a la red de alimentación hacia delante. En el primer tipo de red todas las conexiones siguen una misma orientación: para calcular las salidas de las neuronas en cualquier capa bastaba con conocer las salidas de la capa inferior. En cambio, la simple evaluación de la red recurrente es equivalente a resolver un conjunto de ecuaciones no lineales implícito. Algunas entradas de la red no se conocen *a priori*, pues son salidas de las neuronas recurrentes y tienen una función dual como entrada y como salida, es decir, la expresión para la evaluación de la salida de la neurona recurrente es una función implícita.

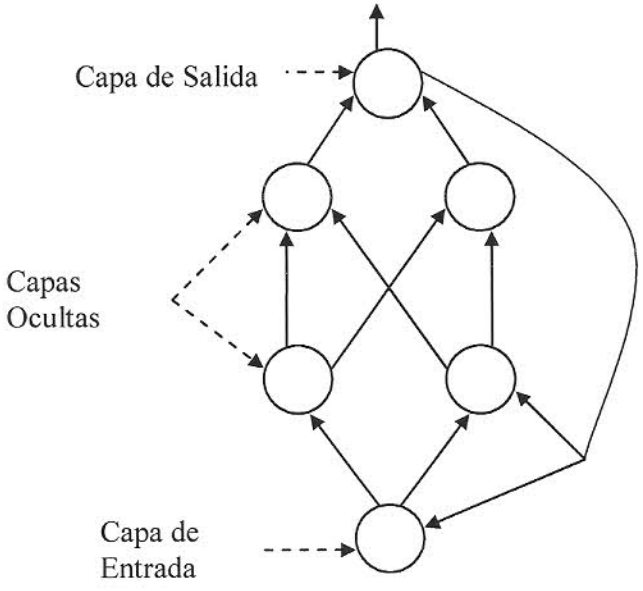

Fig. 2.5 Representación esquemática de una RNA recurrente con 4 capas.

En este tipo de arquitecturas las salidas pueden ser dependientes de sí mismas. En la práctica esto representa que el valor de la función en cierto tiempo depende de los valores en el tiempo cero u otros puntos en el tiempo más. Las RNA's recurrentes son utilizadas con frecuencia en aplicaciones como lo son la rectificación de señales, modelación de sistemas continuos no lineales, entre otros. En particular, son comunes las arquitecturas en las que una capa entera de neuronas recurrentes se retroalimenta a una capa inferior y este tipo de estructuras es denominada como "redes tipo Elman".

La última pieza del paradigma de la RNA es la regla de aprendizaje. Esta busca cambiar la fuerza entre las conexiones entre neuronas mediante "experiencia". Suponga que un conjunto de p pares entrada-salida están disponibles, se desea construir una red que capture el mapeo implícito entre dichas entradas y salidas. El proceso de entrenamiento de la red se

alcanza al minimizar la suma del cuadrado de los errores entre las salidas de la red y los valores experimentales observados para cada par entrada-salida.

Para la pequeña red de la Fig. 2.4 suponga que se tiene un conjunto de pares $I^k - C^k$ de datos disponible ($k = 1,...,p$). Para evaluar la red debemos primero asignar la salida de la neurona de la primera capa con las entradas, es decir $v_1^k = I^k$. Entonces, en términos matemáticos, el entrenamiento de la red se alcanza al resolver el siguiente problema de minimización:

$$\min_{W,\Theta} E = \frac{1}{2}\sum_{k=1}^{p}\left(O^k - v_6^k\right)^2 = \frac{1}{2}\sum_{k=1}^{p}(e^k)^2 \tag{2.6}$$

donde v_6^k es las salida de la red evaluada usando las entradas del k-ésimo par. Este simple problema se resuelve mediante el concepto de la diferenciación de funciones implícitas. Este método consiste en cambiar los pesos y umbrales en la dirección opuesta del gradiente $\left(-\partial E/\partial w_{ij}, -\partial E/\partial \theta_i\right)$. Así, usando la regla de la cadena, se derivaron fórmulas recursivas simples para el cálculo de estas derivadas. A estas fórmulas se les conoce en la literatura de redes neuronales, como el algoritmo de propagación hacia atrás. Así, los pesos y umbrales son modificados de acuerdo a:

$$w_{ij} \longleftarrow w_{ij} + \eta\left(-\frac{\partial E}{\partial w_{ij}}\right) \tag{2.7}$$

$$\theta_i \longleftarrow \theta_i + \eta\left(-\frac{\partial E}{\partial \theta_i}\right) \tag{2.8}$$

donde η se le denomina "velocidad de aprendizaje", la cual es un parámetro apropiadamente elegido que controla la velocidad de aproximación al mínimo buscado.

Antes de proceder a describir el procedimiento de entrenamiento de las RNA's con alimentación hacia delante, es necesario estandarizar la nomenclatura. El peso asociado con la contribución de la k-ésima neurona de en la capa (i-1) en la salida de la j-ésima neurona de la i-ésima capa se denotará W_{ijk}. De la misma manera, el umbral para el cálculo de la salida de la j-ésima neurona de la i-ésima capa se denotará θ_{ij}. El número de neuronas de la i-ésima capa es n_i. Usando esta nomenclatura, las salidas de las neuronas de las capas ocultas (i=2,3) están dadas por:

$$V_{ij} = g\left(\sum_{k=1}^{n_{i-1}} W_{ijk} V_{i-1,k} + \theta_{ij}\right) \tag{2.9}$$

donde g(.) es la función de activación sigmoidal:

$$g(Y) = \frac{1}{2}\left(1 + \tanh(Y)\right) \tag{2.10}$$

Para la capa de salida (i=4), las neuronas son lineales, entonces sus salidas son simplemente una suma pesada de sus entradas más un umbral. No se presentan las fórmulas para las neuronas de en la capa de entrada (i=1) dado que su función es solamente distribuir las entradas de la red a las neuronas de la primer capa oculta.

$$V_{4j} = \sum_{k=1}^{n3} W_{4jk} V_{3k} + \theta_{4j} \tag{2.11}$$

La minimización de la función de error, también denominada función de energía, puede lograse utilizando una gran variedad de métodos de optimización. Los métodos más populares en la literatura de las redes neuronales son los del descenso más inclinado y el de gradiente conjugado. Estos métodos requieren de expresiones para las derivadas de la función de energía respecto de los pesos y umbrales de la red neuronal. Se usa la regla de la cadena para derivar fórmulas recursivas para el cálculo de estas derivadas, denominadas regla delta o

algoritmo de propagación hacia atrás. Iniciando en la capa superior, ya que las salidas de las neuronas en esta capa aparecen explícitamente, se obtienen las siguientes expresiones para cada neurona p:

$$\frac{\partial E}{\partial W_{4jk}} = -\sum_{p=1}^{P} \delta_{4j}^{p} V_{3k}^{p} \tag{2.12}$$

$$\frac{\partial E}{\partial \theta_{4j}} = -\sum_{p=1}^{P} \delta_{4j}^{p} \tag{2.13}$$

Para las capas inferiores (i=2,3):

$$\frac{\partial E}{\partial W_{ijk}} = -\sum_{p=1}^{P} \delta_{ij}^{p} V_{(i-1),k}^{p} \tag{2.14}$$

$$\frac{\partial E}{\partial \theta_{ij}} = -\sum_{p=1}^{P} \delta_{ij}^{p} \tag{2.15}$$

$$\delta_{ij}^{p} = -\sum_{h=1}^{n_i+1} W_{(i+1)hj} \delta_{(i+1)h}^{p} \tag{2.16}$$

Donde se han hecho las siguientes abreviaciones:

$$\delta_{3j}^{p} \equiv g'(net_{3j}^{p}) \sum_{l=1}^{n4} W_{4lj} \delta_{4l}^{p} \tag{2.17}$$

$$\delta_{2j}^{p} \equiv g'(net_{2j}^{p}) \sum_{l=1}^{n3} W_{3lj} \delta_{3l}^{p} \tag{2.18}$$

$$net_{3j}^{p} \equiv \sum_{k=1}^{n2} W_{3jk} V_{2k}^{p} + \theta_{3j} \tag{2.19}$$

$$net_{2j}^{p} \equiv \sum_{k=1}^{n1} W_{2jk} V_{1k}^{p} + \theta_{2j} \tag{2.20}$$

donde $g'(.)$ es la derivada de la función $g(.)$; para la forma sigmoidal específica se tiene:

$$g'(Y) = \frac{1}{2}\left(1 - \tanh^{2}(Y)\right) \tag{2.21}$$

Nótese la secuencia que debe seguirse en la evaluación de las derivadas: el error es propagado desde la capa superior hacia abajo. Es debido a esto que frecuentemente a esta arquitectura de le denomina red neuronal de propagación hacia atrás.

El algoritmo más común para calcular el cambio de parámetros de la red durante el entrenamiento es el algoritmo del descenso más inclinado con una velocidad de aprendizaje fija. Para la m-ésima iteración los pesos y umbrales cambiarán de acuerdo a la siguiente fórmula:

$$W_{ijk}^{m+1} = W_{ijk}^{m} + \eta\left(-\frac{\partial E}{\partial w_{ij}}\right)^{m} \qquad (2.22)$$

Otra técnica muy usada para el entrenamiento de la red es la técnica del gradiente conjugado. Esta técnica es más eficiente en alcanzar la convergencia que la técnica del descenso más inclinado, especialmente en casos en los que el entrenamiento de la red se realiza fuera de línea. Esta técnica es un método de optimización de segundo orden que está basada en expansión en series de Taylor de funciones no lineales hasta los términos de segundo orden. La técnica del gradiente conjugado garantiza que el óptimo se encontrará después de n iteraciones, donde n es el número de variables del espacio de optimización, en ausencia de errores de redondeo.

2.4 Filtros de Kalman

Mientras que los modelos de RNA's ofrecen una buena representación de la respuesta dinámica del sistema, su entrenamiento fuera de línea no le permite arrojar predicciones

precisas a lo largo de una región extendida del parámetro. Esto se debe a que fuera de línea la RNA no tiene a su disposición información del ruido presente en las mediciones que puede estar modificando el comportamiento dinámico del sistema. Para resolver este problema, en este trabajo se propone una modificación a la estructura del modelo de RNA basada en la estructura lineal de los filtros tipo Kalman.

El filtro de Kalman es una herramienta matemática poderosa que está cobrando gran importancia actualmente en áreas como las gráficas por computadora y el procesamiento de señales. Este tipo de filtros es el mejor estimador posible (óptimo) para una gran cantidad de problemas y un estimador útil y efectivo para una cantidad aún mayor de sistemas. El filtro de Kalman es un filtro recursivo eficiente que logra estimar los estados de un sistema dinámico a partir de una serie de mediciones ruidosas incompletas. Este filtro es esencialmente un conjunto de ecuaciones matemáticas que implementa un estimador del tipo predictor corrector que es óptimo en el sentido de que, cuando algunas condiciones se consiguen, minimiza la covarianza del error [29].

Los filtros de Kalman están basados en sistemas dinámicos lineales discretizados en el tiempo. Se modelan como una cadena de Markov construida sobre operadores lineales, perturbada por un ruido Gaussiano. El estado del sistema está representado como un vector de números reales. En cada incremento de tiempo (discreto), se aplica un operador a los estados para generar el nuevo estado, mezclado con un poco de ruido y opcionalmente, con información de los controladores del sistema, en el caso de que se conozcan. Luego de esto,

se aplica otro operador lineal mezclado con un poco más de ruido para generar las salidas visibles de un estado oculto.

El filtro discreto de Kalman [30] aborda el problema general de la estimación del estado $x \in \Re^n$ de un proceso discreto en el tiempo que está gobernado por la ecuación en diferencias lineal estocástica

$$x_k = Ax_{k-1} + Bu_k + w_{k-1}, \tag{2.23}$$

con una medición $z \in \Re^n$ que es

$$z_k = Hx_k + v_k. \tag{2.24}$$

Las variables aleatorias w_k y v_k representan el ruido del proceso y de la medición respectivamente. Estas variables de ruido se consideran independientes, blancas y con distribución de probabilidad normal

$$p(w) \approx N(0, Q) \tag{2.25}$$

$$p(v) \approx N(0, R) \tag{2.26}$$

En la práctica, las matrices de covarianza Q y R, varían con el tiempo, pero se consideran constantes debido a que su variación es despreciable.

La matriz A en la ecuación (2.23) relaciona el estado previo en el tiempo *k-1*, con el estado actual en el tiempo k, en ausencia de una fuerza impulsora o de ruido de proceso. La matriz B relaciona la entrada óptima de control $u \in \Re^l$ con el estado x. La matriz H de la ecuación de medición (2.24), relaciona el estado con la medición z_k. Estas matrices se consideran constantes ya que estas relaciones permanecen así a lo largo del proceso.

Se define $\hat{x}_k^- \in \Re^n$ como el estado estimado *a priori* a un tiempo k dado el conocimiento que se tiene del proceso previo al paso k, y $\hat{x}_k \in \Re^n$ como el estimado *a posteriori* en el tiempo k dada la medición z_k. Ahora se pueden definir los errores de los estimados *a prori* y *a posteriori* como $e_k^- \equiv x_k - \hat{x}_k^-$ y $e_k \equiv x_k - \hat{x}_k$ respectivamente. La covarianza del error *a priori* es entonces $P_k^- = E[e_k^- e_k^{-T}]$ y la covarianza del error *a posteriori* es $P_k = E[e_k e_k^T]$.

El objetivo del filtro de Kalman es encontrar una ecuación que calcule un estimado *a posteriori* del estado del sistema, como una combinación lineal de un estimado *a priori*, y de la diferencia entre la medición actual y de una predicción de la medición, multiplicada por un factor de peso como se muestra en la ecuación (2.27).

$$\hat{x}_k = \hat{x}_{k-1} + K(z_k - H\hat{x}_{k-1}) \qquad (2.27)$$

La diferencia $(z_k - H\hat{x}_k^-)$ en la ecuación (2.27) es llamada *innovación* de la medición o *residual*. El resifual refleja la discrepancia entre las mediciones predichas y las mediciones actuales. Un residual de cero significa que ambas concuerdan.

La matriz K es elegida de modo que la ganancia o factor de combinación minimice la covarianza del error de la estimación *a posteriori* y está dada por la ecuación (2.28). Esta minimización se logra sustituyendo la ecuación (2.27) en la definición de e_k, y sustituyendo esto en la definición de P_k. Para más detalles sobre la derivación de la ecuación 2.28 ver [31-33].

$$K_k = \hat{P}_{k-1} H^T (H\hat{P}_{k-1} H^T + R)^{-1} \tag{2.28}$$

En la ecuación 2.28 se puede observar que cuando la covarianza del error de medición R tiende a cero, la ganancia K le da un mayor peso al residual. Por otra parte, cuando la covarianza del error del estimado *a priori* tiende a cero, la ganancia K le da menos peso al residual.

$$\lim_{R_k \to 0} K_k = H^{-1} \tag{2.29}$$

$$\lim_{P_k^- \to 0} K_k = 0 \tag{2.30}$$

Otra manera de interpretar la ganancia K es que al acercarse la covarianza del error de medición R a cero, la medición actual z_k es más confiable, mientras que la medición predicha $H\hat{x}_k^-$ es menos confiable. Por el contrario, mientras que la covarianza del error del estimado *a priori* P_k^- tiende a cero, la medición actual es menos confiable, a la vez que la medición predicha $H\hat{x}_k^-$ es más confiable.

La justificación de la ecuación 2.27 se basa en que la probabilidad de que el estimado a priori está condicionado por todas las mediciones previas z_k (Regla de Bayes). Es suficiente mencionar que el filtro de Kalman mantiene los dos primeros momentos de la distribución de estados.

$$E[x_k] = \hat{x}_k \tag{2.31}$$

$$E[(x_k - \hat{x}_k)(x_k - \hat{x}_k)^T] = P_k \tag{2.32}$$

El estimado a posteriori representado por la ecuación 2.27 refleja el promedio (pr mer momento) de la distribución de estados, la cual está normalmente distribuida se las condiciones dadas por las ecuaciones 2.25 y 2.26 se cumplen. La covarianza del err or a posteriori refleja la varianza de la distribución de estados (el segundo momento no central). En otras palabras,

$$P(x_k|z_k) \approx N(E[x_k], E[(x_k - \hat{x}_k)(x_k - \hat{x}_k)^T]) = N(\hat{x}_k, P_k) \tag{2.33}$$

Para más detalles de el origen probabilístico del filtro de Kalman ver [31].

El filtro de Kalman es un estimador recursivo, es decir, solamente necesita los est ados estimados en un tiempo anterior y las mediciones actuales para calcular el estimado d e los estados actuales. El filtro de Kalman estima los estados de un proceso usando una form a de control por retroalimentación: el filtro estima el estado del proceso en algún tiempo, y des pués obtiene la retroalimentación en forma de mediciones ruidosas. Así, las ecuaciones del filtro de Kalman caen en dos categorías: ecuaciones de predicción y ecuaciones de actualizació n de mediciones. Las ecuaciones de predicción son las encargadas de proyectar adelante e n el tiempo los estimados del estado actual y la covarianza del error, para obtener estimados *a priori* para el siguiente tiempo. Las ecuaciones de actualización de las mediciones so n las encargadas de la retroalimentación, incorporando una nueva medición a la estimaci ón *a priori*, para obtener un estimado *a posteriori* mejorado. Un esquema completo d e la operación del filtro de Kalman se presenta en la figura 2.6. El filtro de Kalman básico está limitado a una suposición de linealidad, sin embargo, muchos sistemas no triviales, com o los sistemas químicos, tienen un comportamiento no lineal. Esta no linealidad puede ser aso ciada

ya sea con el modelo del proceso o con el modelo de la observación, o con ambos. Algunas de las aplicaciones más interesantes y exitosas de los filtros de Kalman, son las que tratan con el problema de la no linealidad.

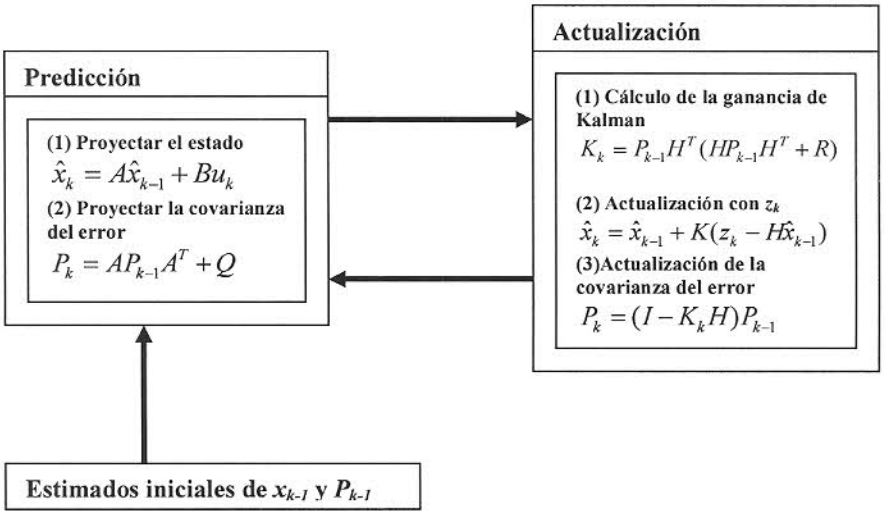

Fig. 2.6 Esquema de operación del filtro de Kalman.

Una modificación del filtro de Kalman que aplica una linealización alrededor del promedio y covarianza actual es el conocido como Filtro de Kalman Extendido (FKE) El FKE es similar a las series de Taylor, en el sentido de que linealiza el estimado alrededor del estimado actual, usando las derivadas parciales de los modelos del proceso y las mediciones para calcular los estimados, aún en la presencia de no linealidades [30]. Sin embargo, el FKE presenta una falla fundamental, es que las distribuciones (o densidades en el caso continuo) de las variables aleatorias ya no es normal después de pasar por sus transformaciones no lineales respectivas. El FKE es simplemente un estimador que puede solo aproximarse a la optimalidad de la regla de Bayes por medio de linealización.

El filtro de Kalman extendido es capaz de compensar algunas de las no linealidades que se pueden presentar en los modelos del proceso y de las mediciones, pero tiene un desempeño particularmente pobre cuando se trata de funciones altamente no lineales. Eso se debe a que solo los promedios se propagan a través de la no linealidad. El filtro *Unscented* de Kalman (UKF) usa una técnica de muestreo determinista para obtener un conjunto mínimo de puntos muestra (llamados puntos sigma) alrededor del promedio. Para hacer el muestreo de una variable x de dimensión L a través de una función $y = g(x)$, es necesario formar una matriz X de $2L + 1$ puntos sigma. Estos puntos sigma son después propagados a través de las funciones no lineales para recuperar la covarianza del estimado. Este procedimiento se encuentra descrito en [34,35]. El resultado es un filtro que captura más precisamente el verdadero promedio y covarianza. Además, esta técnica no necesita del cálculo analítico de los Jacobianos, que para el caso de funciones complejas puede llegar a ser una tarea difícil.

2.5 Control de horizonte recedente

El protocolo de detección de bifurcaciones objeto de estudio, en su modalidad actual, hace uso de una estrategia de control de *dead-beat* como política de variación del parámetro para llevar al sistema hacia el punto de bifurcación. Esta ley de control consiste en la minimización de la distancia entre el estado actual del sistema y el punto crítico en una iteración [17,18].

Debido a que los modelos polinomiales utilizados para hacer la identificación de la respuesta dinámica del sistema son lineales en el parámetro de bifurcación p, la solución del

problema de minimización involucrado en esta política de control, es la de una ecuación lineal en p. Sin embargo, para la nueva estrategia de identificación basada en RNA's y filtros de Kalman, la ventaja de linealidad deja de ser válida. Otra desventaja del control tipo dead-beat es que este tipo de control puede requerir de grandes variaciones del parámetro de bifurcación y con esto, los estados del sistema pueden salir de la vecindad del punto crítico que se está buscando. Este problema adquiere una mayor importancia en sistemas estocásticos que no son invariantes en el tiempo y para los que los valores de sus parámetros son conocidos solo por un corto intervalo de tiempo. Bajo estas condiciones una ley de control óptimo de horizonte finito que se actualice al propagarse el tiempo resulta una alternativa atractiva. A este tipo de control se le llama control de horizonte recedente o de horizonte *rodante* [36].

El control de Horizonte Recedente (CHR) es comparado frecuentemente con un juego de ajedrez. Cuando en un juego de ajedrez se tiene el turno de hacer un movimiento, mentalmente se juega una secuencia de movimientos potenciales para uno y para el oponente, considerando solamente unos pocos movimientos. La mejor estrategia es elegida entre todas las consideradas y solo se efectúa el primer movimiento de esa secuencia. En el caso de que el oponente responda con un movimiento que no fue considerado, entonces se tiene que pensar cuidadosamente e incluso descartar la estrategia inicial. Sin embargo, el caso en e que el oponente hace un movimiento predicho merece de atención.

Mientras se decide la mejor manera para responder al movimiento del oponente, se pueden descartar una gran cantidad de escenarios previamente considerados, las cuales correspondían a los movimientos que el oponente no ha realizado. Como consecuencia, se es

ahora capaz de ver uno o dos movimientos más adelante en el juego que en el turno anterior. Debido a esto, es probable que pueda descubrir una nueva estrategia, que considere mejor que la que anteriormente se consideraba implementar. El punto importante, ya que está relacionado a los problemas que surgen en el CHR, es que la secuencia de movimientos actual, frecuentemente no corresponde a ninguna de las estrategias que pudiera haberse considerado en alguno de los turnos anteriores.

Considérese ahora el CHR. Dado un modelo dinámico de un sistema a controlar, la idea básica del CHR es la de implementar, en cada instante de tiempo, solo la primera parte de la solución a un problema dado de control óptimo de horizonte finito. En el siguiente instante de muestreo, se toma una nueva medición del sistema y se actualiza el problema de control óptimo con esta información. El proceso de actualizar los datos del problema de control óptimo, y de implementar solo la primer parte de la solución se repite en todos los instantes de tiempo futuro. Esta metodología da como resultando en una ley de retroalimentación de datos medidos para el que existe una longitud finita del horizonte, de modo que garantiza estabilidad en el punto crítico [37,38].

El principio del CHR es en sí un tipo de los métodos de diseño de control óptimo conocidos comúnmente como control predictivo de modelo (CPM). El uso de este tipo de control ha sido extremadamente exitoso en la industria de procesos químicos [39,40], principalmente debido a su habilidad de incorporar restricciones relacionadas con el dominio del tiempo en las entradas y salidas de la formulación del problema. Otro motivo importante

para el creciente interés en el CHR es que permite la síntesis de controladores para dinámicas no lineales [41].

En el control de horizonte recedente se resuelve un problema de control óptimo de horizonte finito generando una trayectoria de control de lazo abierto de los estados. La trayectoria de control resultante es entonces aplicada al sistema por una fracción de la longitud del horizonte. Este proceso se repite entonces resultando en una ley de retroalimentación de datos medidos para el que existe una longitud finita del horizonte que garantiza estabilidad en el punto crítico [37,38].

Para el sistema general de la ecuación (2.34-2.35), la ley de control con horizonte infinito resulta de la minimización de la función (2.36-2.37)

$$x_{j+1} = f(x_j, u_j) \tag{2.34}$$

$$y_j = g(x_j) \tag{2.35}$$

$$\Phi = \frac{1}{2}\sum_{j=0}^{\infty}(y_j - y_{cr})^T Q(y_j - y_{cr}) + (u_j - u_{cr})^T R(u_j - u_{cr}) + \Delta u_j^T S \Delta u_j \tag{2.36}$$

$$\Delta u_j = u_j - u_{j-1} \tag{2.37}$$

donde x representa a los estados del sistema, u la entrada de control, y y las salidas. Φ es la función a minimizar donde Q, R y S son matrices positivas definidas.

Debido a que las trayectorias de los estados y de las entradas se acercan exponencialmente a cero, existe un horizonte finito N de modo que las trayectorias del sistema estén contenidas en una vecindad del punto crítico, siendo éste un punto de equilibrio estable.

Tomando esto en cuenta y para el caso en el que las entradas de control son invariantes en el tiempo, el controlador de horizonte finito (recedente) toma la forma de la ecuación (2.38) [37,38].

$$\min \Phi = \frac{1}{2}\sum_{j=0}^{N-1}(y_j - y_{cr})^T Q(y_j - y_{cr}) \qquad (2.38)$$

Una de las ventajas principales del CHR es que se puede calcular soluciones a los problemas de control (subóptimas pero estabilizantes) computacionalmente prácticas. Es decir, esta técnica es capaz de calcular instantáneamente la acción de control a aplicar sobre el sistema, sin ser una carga computacional considerable sobre la técnica de detección de bifurcaciones.

2.6 Simulaciones cinéticas Monte Carlo

Los métodos Monte Carlo son una clase de algoritmos computacionales ampliamente usados en la simulación de varios sistemas físicos y matemáticos. La característica que los distingue de otros métodos de simulación como la dinámica molecular es su estocasticidad, es decir, su naturaleza no determinística, ya sea por el uso de números aleatorios o pseudos aleatorios. Debido a la repetición de algoritmos y al gran número de cálculos involucrados, los métodos Monte Carlo son apropiados como técnicas de simulación por computadora. El método Monte Carlo es un método numérico usado para encontrar soluciones a problemas matemáticos que pueden tener muchas variables y no pueden ser resueltos fácilmente.

Los métodos Monte Carlo son especialmente útiles en el estudio de sistemas con un gran número de grados de libertad acoplados como lo líquidos, materiales complejos, etc. Más ampliamente, los métodos Monte Carlo son útiles para modelar fenómenos con

incertidumbres significativas en las entradas, como en los cálculos de riesgos en los negocios. Estos métodos se usan también en la evaluación de integrales definidas, particularmente cuando se trata con condiciones de frontera complicadas.

Las simulaciones Cinéticas Monte Carlo (CMC) se refieren a un método de simulación por computadora Monte Carlo para simular la evolución en el tiempo de algunos procesos que ocurren en la naturaleza. Típicamente estos son procesos que ocurren a una cierta velocidad.

Es importante notar que estas velocidades son entradas del algoritmo de CMC, el método en sí no las puede predecir. La ventaja de este método es que de ser correctas estas velocidades introducidas, los procesos asociados con ellas son procesos de tipo Poisson y los diferentes procesos son independientes entre sí, se puede obtener exactamente la escala de tiempo correcta de la evolución del sistema simulado. Además, si las transiciones cumplen con un balance detallado, el algoritmo CMC puede ser usado para simular equilibrio termodinámico. Sin embargo, CMC se usa ampliamente para simular procesos que no se encuentran en equilibrio, por lo que no se necesita cumplir con el balance detallado. El algoritmo CMC es eficiente en el sentido de que garantiza que toda iteración produce una transición.

El algoritmo básico de CMC para simular la evolución en el tiempo de un sistema donde algunos procesos pueden ocurrir con velocidades conocidas r puede ser escrito así:

1. Inicializar el tiempo t=0.
2. Formar una lista de posibles velocidades en el sistema r_i.

3. Calcular la función de acumulación $R_i = \sum_{j=1}^{i} r_j$ para $i = 1, \ldots, N$, donde N es el número total de transiciones. Denotar $R = R_N$.
4. Tomar un número aleatorio uniforme $u \in [0,1]$.
5. Encontrar el evento que lleve a cabo i al encontrar una i para la cual $R_{i-1} < uR \leq R_i$. Esto se puede lograr eficientemente usando búsquedas binarias.
6. Efectuar el evento i.
7. Recalcular todas las velocidades r_i, la cual pude haber cambiado debido a la transición. En caso de ser apropiado, agregar nuevas transiciones i y actualizar N.
8. Obtener un nuevo número aleatorio $u \in [0,1]$.
9. Actualizar el tiempo $t = t + \Delta t$ donde:

$$\Delta t = -\frac{\log u}{R} \tag{2.34}$$

10. Regresar al paso 2.

Nótese que la misma escala de tiempo promedio puede ser obtenida usando $\Delta t = 1/R$ en el paso 9, sin embargo, incluir el número aleatorio describe mejor la naturaleza estocástica del proceso. Para mayores detalles consultar [42,43].

Este algoritmo se enfoca en simular la evolución dinámica de sistemas de átomos. La herramienta básica para esta clase de métodos de simulación atomística es la Dinámica Molecular (DM), en la cual se propagan las ecuaciones clásicas de movimiento hacia adelante en el tiempo. Esto requiere inicialmente elegir un potencial interatómico para los átomos y definir las condiciones de frontera. Por ejemplo, para cierta simulación, el sistema puede

consistir de varios miles de millones de átomos, e integrando las ecuaciones de movimiento hacia delante en el tiempo, el comportamiento del sistema emerge naturalmente, sin requerir algún grado de intuición por parte del usuario.

La evolución dinámica obtenida mediante esta metodología puede ser una representación muy precisa de la física real del sistema. Esto resulta extremadamente atractivo y explica la popularidad del método. Sin embargo, existe una seria limitante, para realizar una integración precisa se requiere de tamaño de paso lo suficientemente pequeños (~ 10^{-15}s) para resolver las vibraciones atómicas. En consecuencia, el tiempo total de simulación está limitado a tiempos menores a un microsegundo, mientras que los procesos estudiados se llevan a cabo a escalas mucho más grandes. Recientemente, los llamados avanzadores de paso grueso (coarse time-steppers) han tenido algo de éxito en superar la limitante de las escalas de tiempo, derivando descripciones macroscópicas explícitas [44-46].

Los avanzadores de paso grueso son capaces de evolucionar las variables macroscópicas de un sistema del que solo se cuenta con leyes de evolución microscópicas o mesoscópicas. Para este procedimiento se supone que existe una descripción macroscópica cerrada, de manera que el comportamiento macroscópico puede ser descrito por unas pocas variables. El avanzador de paso grueso consiste en los siguientes pasos conceptuales:

a) Elegir el promedio estadístico que describe el problema "grueso" y una condición inicial "gruesa" para la descripción estadística.
b) Definir un operador de "levantamiento" (*lifting*) que construya las condiciones microscópicas iniciales (distribuciones) consistentes con la condición inicial gruesa.

c) La distribución microscópica inicial evoluciona mediante una regla de evolución en el tiempo por un periodo de tiempo relativamente corto.
d) Los resultados promedio de las configuraciones microscópicas ya evolucionadas son usados para obtener el estado macroscópico resultante.

Los estados macroscópicos obtenidos mediante los avanzadores de paso gruesos son simplemente usados en el procedimiento de identificación de bifurcaciones.

CAPITULO 3

METODOLOGÍA

En esta sección se explica la metodología a seguir para lograr la robustificación del protocolo de detección de puntos de bifurcación presentado en [17]. Esta robustificación es necesaria para que dicha técnica pueda ser aplicada en el análisis de simulaciones moleculares. El procedimiento de robustificación se llevará a cabo en dos etapas principales: desarrollo de una técnica robusta de identificación del comportamiento dinámico, capaz de describir el comportamiento en línea de simulaciones moleculares; y la implementación de una ley de control de horizonte recedente que imponga una política de variación del parámetro de manera que el sistema converja suavemente hacia el punto de bifurcación.

El potencial de aplicación de la versión modificada del protocolo para la caracterización de simulaciones microscópicas se comprobará aplicándola a la detección de bifurcaciones en un modelo de oxidación catalítica de monóxido de carbono a dos diferentes niveles; un modelo de campo medio y simulaciones cinéticas Monte Carlo del mismo sistema reactivo.

3.1 Modelo de referencia: Oxidación catalítica de CO.

Para ilustrar el funcionamiento del protocolo de detección de bifurcaciones, se utilizan simulaciones de una reacción catalítica superficial simple como referencia. Se estudia este sistema reactivo como medio de comparación con los trabajos de Makeev y col. [13,14].

La reacción estudiada es A + ½ B_2 → AB, y corresponde a la oxidación catalítica superficial de CO.

3.1.1 Modelo de campo medio de la oxidación catalítica de CO

Un modelo simplificado de campo medio de la reacción de oxidación de CO se encuentra en [14]. Las ecuaciones de evolución el campo medio de las fracciones cubiertas de catalizador por las especies presentes en la superficie se encuentra dado por las ecuaciones (3.1) y (3.2), donde $\theta_* = 1 - \theta_1 - \theta_2$ es la fracción de espacios vacíos en el catalizador, ε es el parámetro energético para interacciones laterales ($\varepsilon/T = constante$), T es la temperatura absoluta y R la constante del gas ideal. Las constantes adimensionales α, β, γ y k_r estan asociadas con las velocidades de adsorción de CO, adsorción disociativa de oxígeno, desorción de CO_2 y reacción superficial respectivamente. Los valores de estos parámetros son: $\alpha = 1.6$, $\gamma = 0.001$ y $k_r = 1.0$, $R = 1.9872$, $\varepsilon/T = -4.0$ y β es considerado como el parámetro de bifurcación en las figuras presentadas a lo largo de este documento.

$$d\theta_1/dt = \alpha\theta_* - \gamma\theta_1 \exp(-4\theta_1\varepsilon/RT) - 4k_r\theta_1\theta_2 \exp(-3\theta_1\varepsilon/RT) \qquad (3.1)$$

$$d\theta_2/dt = 4\beta\theta_*^2 - 4k_r\theta_1\theta_2 \exp(-3\theta_1\varepsilon/RT) \qquad (3.2)$$

Para estos valores de los parámetros de operación, el sistema presenta biestabilidad. En las figuras 3.1 y 3.2 se observan dos puntos de bifurcación, $\beta_1 = 0.69340$ y $\beta_2 = 0.90587$. Para valores del parámetro menores que β_1 y mayores que β_2 el sistema presenta un punto estable único y para valores intermedios se presenta dos puntos de equilibrio, dos estables y uno inestable. En esta región de valores del parámetro, el punto estacionario al cual convergen las trayectorias del sistema depende de las condiciones iniciales de éste.

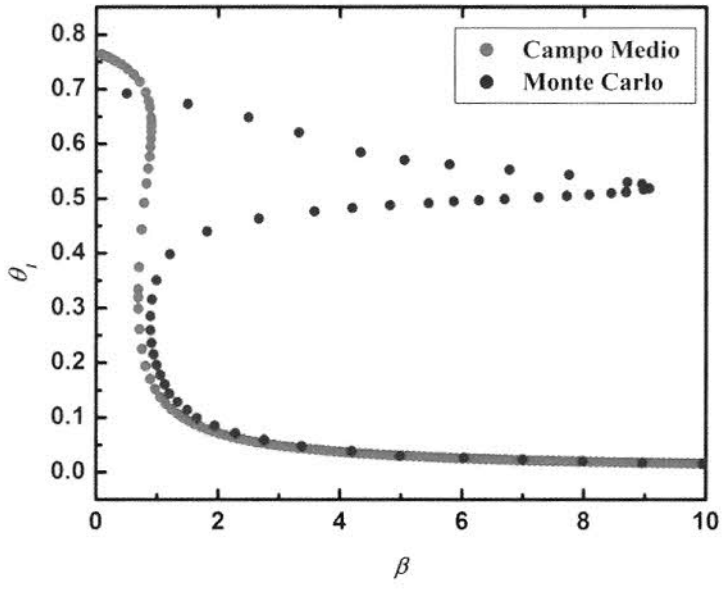

Fig. 3.1 Diagrama de bifurcación de θ_1 del sistema de oxidación catalítica de CO.

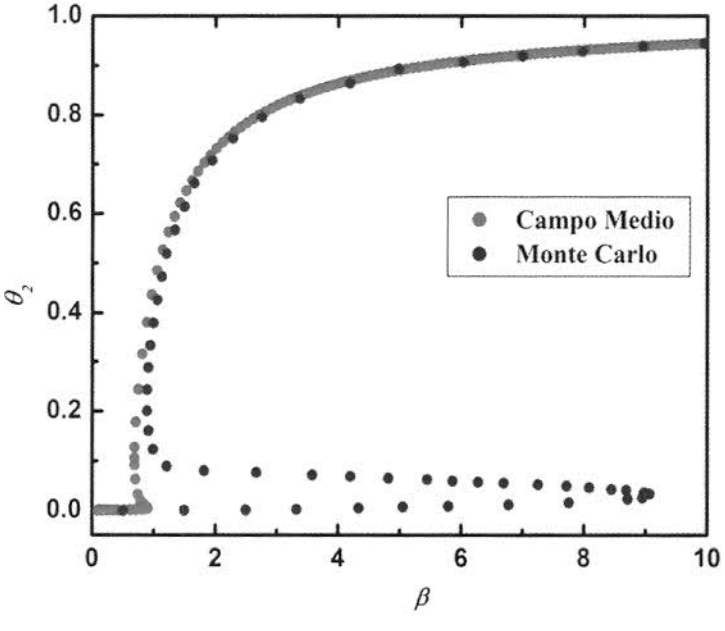

Fig. 3.2 Diagrama de bifurcación de θ_2 del sistema de oxidación catalítica de CO.

3.1.2 Simulaciones cinéticas Monte Carlo de la oxidación catalítica de CO

Las simulaciones Cinéticas Monte Carlo (CMC) constituyen el segundo tipo de modelos que se utilizan en el presente trabajo como referencia para la evaluación del desempeño del protocolo de detección de bifurcaciones. La metodología seguida para estas simulaciones se encuentra descrita en [13,14].

En estas simulaciones se considera difusión rápida de los adsorbatos. Las soluciones de los estados estables macroscópicos calculados corresponden a velocidades de adsorción infinitamente rápidas. Se consideran dos métodos de simulación cinética Monte Carlo: para el primero, se consideran los eventos de migración explícitamente, es decir, el algoritmo emplea las probabilidades de transición difusional y las probabilidades de reacción; para el segundo, se usa un método de relajación de Metrópolis junto con las probabilidades de reacción. La movilidad infinita en particular, permite sugerir que en un largo plazo, el comportamiento del sistema macroscópico puede ser descrito en término de las fracciones cubiertas promedio: las funciones de correlación de orden mayor se convierten rápidamente en función de las fracciones cubiertas.

Se obtienen series de tiempo a partir de los resultados arrojados por el avanzador de paso grueso de simulaciones CMC de baja resolución (malla de 100 × 100, $N_{RUN} = 2 \cdot 10^3$, donde N_{RUN} es el número de ensambles hechos para tomar el promedio de los estados). En las figuras 3.1 y 3.2 se muestra también el diagrama de bifurcación de estas simulaciones para la oxidación catalítica superficial de CO. Estas simulaciones presentan también biestabilidad y dos puntos de bifurcación, $\beta = 0.89047$ y $\beta = 9.06998$, como el modelo de campo medio. Las diferencias que se presentan entre los diagramas de bifurcación de los dos modelos se deben

principalmente a las interacciones laterales que se presentan entre las especies a tasas altas de cobertura de CO que no son consideradas en el modelo de campo medio y sí en las simulaciones CMC.

3.2 Identificación robusta de la dinámica del sistema.

En la sección 2.2 se mencionó que una etapa de primordial importancia para el desempeño del protocolo de detección de bifurcaciones es la etapa de identificación del comportamiento dinámico del sistema. El uso de modelos polinomiales en esta etapa es poco recomendable debido a su pobre desempeño para caracterizar sistemas en los que las ubicación de los estados estacionarios es casi independiente del parámetro de operación, ya que se restringe la robustez de la técnica y se impone la necesidad del uso de señales de excitación en la identificación, lo que dificulta la labor de la ley de control.

3.2.1 Identificación mediante redes neuronales artificiales

Una alternativa a los modelos polinomiales capaz de compensar sus deficiencias son las Redes Neuronales Artificiales (RNA's). Este tipo de modelos es capaz de fungir como aproximadores universales de una función. Mientras que los modelos de RNA's ofrecen una mejor alternativa con respecto de los polinomios, para obtener predicciones precisas a lo largo de una región extendida del parámetro se debe llevar a cabo el entrenamiento en línea de RNA's, particularmente para características dinámicas no lineales como el ciclo de histéresis que se muestra en las figura 3.1 y 3.2.

Se utilizaron RNA's regulares de alimentación hacia delante con 2 capas ocultas de 8 neuronas cada una como análogo directo de los modelos polinomiales. Las RNA's fueron entrenadas fuera de línea usando procedimientos de gradiente conjugado. Estos conjuntos de datos consisten en las series de tiempo obtenidas a partir de la integración de las ecuaciones 3.1 y 3.2 por medio del método de Euler con un tamaño de paso de 10^{-1}. Se utiliza este método de integración para obtener series de tiempo que sean análogas a las obtenidas mediante simulaciones Cinéticas Monte Carlo de baja resolución (malla de 100×100, $N_{RUN} = 10^3$). Es decir, las series de tiempo obtenidas mediante integración de Euler presentarán un error del mismo orden del que presentan las simulaciones Monte Carlo de baja resolución. Ambos estados del sistema θ_1 y θ_2, fueron usados como entradas de los modelos junto con el parámetro de bifurcación β. Las variables de salida fueron solo los estados θ_1 y θ_2 después de un paso de integración en el tiempo. Se utilizaron dos conjuntos de datos diferentes consistentes de 1335 y 3750 puntos pertenecientes a estas series de tiempo para el entrenamiento de la RNA.

Con fines de comparación se discute un modelo polinomial de bajo orden en función de las variables medidas y del parámetro de bifurcación. El ajuste de estos polinomios se realiza con el mismo conjunto de datos que se realizó el entrenamiento de la RNA. Dicho modelo toma la siguiente forma:

$$\theta_{1,k} = a_1\theta_{1,k-1}^3 + a_2\theta_{2,k-1}^3 + a_3\beta\theta_{1,k-1}^2 + a_4\beta\theta_{2,k-1}^2 + a_5\beta\theta_{1,k-1}\theta_{2,k-1} + a_6 \qquad (3.3)$$

$$\theta_{2,k} = b_1\theta_{1,k-1}^3 + b_2\theta_{2,k-1}^3 + b_3\beta\theta_{1,k-1}^2 + b_4\beta\theta_{2,k-1}^2 + b_5\beta\theta_{11,k-1}\theta_{2,k-1} + b_6 \qquad (3.4)$$

Los resultados se muestran en la forma de diagramas de bifurcación en la sección 4. Estos diagramas fueron trazados usando el programa MATCONT [6].

3.2.2 Filtro de Kalman modificado

En lugar de utilizar un procedimiento basado en el entrenamiento en línea de la RNA, el cual puede carecer de robustez para ofrecer aproximaciones confiables en un rango extendido del parámtero, se propone una alternativa más simple basada en las capacidades del los observadores de tipo Kalman.

La formulación del filtro de Kalman presentada en la sección 2.4 representa una buena herramienta predictora y correctora de señales de las cuales se tiene alguna incertidumbre, pero está basada en un proceso lineal; es decir, al aplicarse sobre un proceso no lineal no se obtiene la reducción del error necesaria. Aún si se utilizara la versión extendida (FKE) del filtro, los resultados obtenidos no serían adecuados debido a que esta versión se basa en la linealización alrededor de un punto de la trayectoria. Esto puede introducir errores grandes al promedio y covarianza reales del sistema, lo que puede provocar un desempeño sub-óptimo y en algunos casos divergencia, ya que el FKE solo alcanza una precisión de primer orden. Del mismo modo, el uso del filtro de Kalman *unscented* resulta inapropiado ya que sus capacidades de predicción no son lo suficientemente poderosas, debido a que las funciones no lineales usadas para propagar los promedios de las predicciones, no representan adecuadamente las no linealidades presentes en las simulaciones moleculares y solo alcanzan la precisión de tercer orden (expansión de series de Taylor) [35].

Aquí se propone el uso de una modificación que mantiene la estructura del filtro, buscando tomar en cuenta la naturaleza no lineal de los procesos inherentes [47]. Esta modificación está basada en las siguientes suposiciones:

i. La respuesta de una red neuronal a un tiempo k se considera como una medición ruidosa de la respuesta del sistema de referencia y está definido por:

$$\hat{\theta}_{n,k} \cong f_{RNA}\left(\hat{\theta}_{n,k-1};\beta\right) \tag{3.5}$$

ii. La respuesta del sistema de referencia está definido por $\theta_{n,k}$, que es el resultado de integrar las ecuaciones 3.1 y 3.2 a través de un intervalo de tiempo igual al tamaño de paso usado para obtener las series de tiempo usadas como conjunto de entrenamiento de la RNA, utilizando $\theta_{n,k-1}$ como condiciones iniciales.

iii. El error de predicción de la RNA está definido como la diferencia entre las respuestas del sistema de referencia y de la RNA cuando las condiciones iniciales son iguales:

$$e_k = \theta_{n,k} - \hat{\theta}_{n,k} = \theta_{n,k} - f_{RNA}\left(\hat{\theta}_{n,k-1};\beta\right), \qquad \theta_{n,k-1} = \hat{\theta}_{n,k-1} \tag{3.6}$$

iv. El error e_k de la respuesta de la RNA se considera como ruido blanco, es decir, tiene una distribución normal de media cero y no se encuentra correlacionado en el tiempo con otros valores del error.

v. La estructura predictiva del filtro de Kalman es independiente de los estados del sistema (Ec. 2.22), su estimación se calcula a partir de un valor estimado previo, y puede ser escrito de la siguiente manera:

$$\bar{\hat{\theta}}_{n,k} = f_{RNA}\left(\hat{\theta}_{n,k-1},\beta\right) \tag{3.7}$$

vi. La estructura correctiva del filtro de Kalman utiliza datos en tiempo real para llevar a cabo las correcciones (Ec. 2.26). Se emplea una modificación que substituye el uso de datos en tiempo real con la predicción de la RNA con los estados de referencia reales como alimentación, para así obtener de manera directa la desviación de la RNA a partir del valor de respuesta previo del sistema y no hacer uso explícito del error.

$$f_{ref} = f_{RNA}\left(\theta_{n,k-1};\beta\right) \tag{3.8}$$

$$\hat{\theta}_{n,k} = f_{RNA}\left(\hat{\theta}_{n,k-1};\beta\right) + K\left(f_{RNA}\left(\theta_{n,k-1};\beta\right) - Hf_{RNA}\left(\hat{\theta}_{n,k-1};\beta\right)\right) \tag{3.9}$$

$$\hat{\theta}_{n,k} = \hat{\theta}^{-}_{n,k} + K\left(f_{ref} - H\hat{\theta}^{-}_{n,k}\right) \tag{3.10}$$

Esta nueva estructura del filtro de Kalman es ahora capaz de compensar las desviaciones de las predicciones de la RNA debidas a la no linealidad del sistema, al ir acoplando información del sistema en línea. La metodología para su uso se muestra en la figura 3.3.

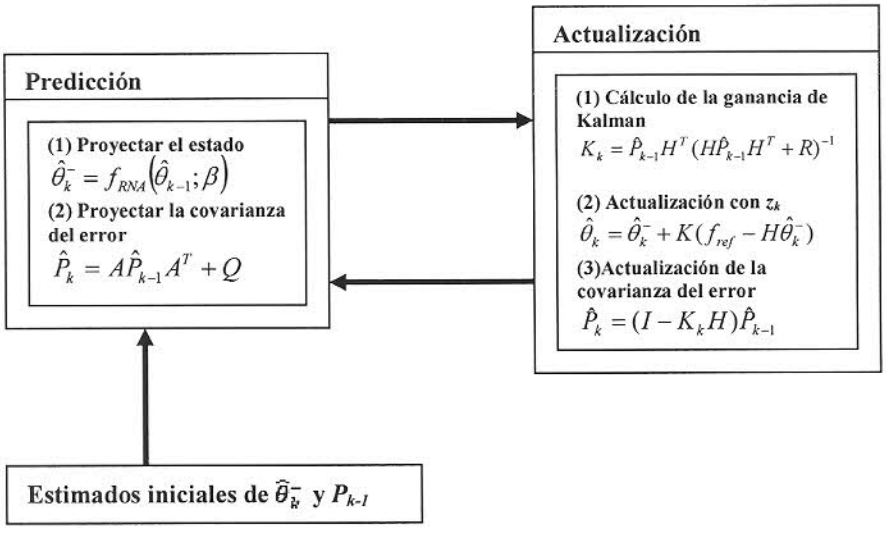

Fig. 3.3 Esquema de operación del filtro de Kalman corregido con RNA's.

Al igual que en la formulación original del filtro de Kalman, en esta nueva formulación las matrices A, H, P, Q y R se consideran constantes. En particular, las matrices A y H corresponden a la matriz identidad, P se define en base a la confianza que se tenga en los estimados iniciales $\hat{\theta}_{n,k-1}$. Una buena primera aproximación del valor de la matriz P es de un orden de 10^1 veces el error de estimación. Las matrices Q y R requieren de sintonización para la determinación de su valor.

3.3 Control de horizonte recedente

Existen diversas alternativas de políticas de control que pueden ser aplicadas al protocolo de detección de bifurcaciones para lograr convergencia hacia el punto de bifurcación de un sistema como el control de dead-beat. Este esquema de control es usado en la versión original del protocolo, logra una convergencia asintótica de los estados del sistema hacia la bifurcación, siempre y cuando se definan condiciones iniciales de búsqueda suficientemente cercanas a ella. Este tipo de control tiene la desventaja de que es necesario aplicar una penalización contra acciones de control fuertes, ya que éstas pueden desestabilizar al sistema y alejarlo del punto de bifurcación buscado.

En la presente tesis se busca lograr un robustecimiento del protocolo de detección de bifurcaciones. En la sección anterior se explicó como la propuesta de una nueva técnica de identificación en línea, capaz de reproducir adecuadamente la dinámica del sistema, puede mejorar ampliamente el desempeño del protocolo. Ahora bien, es necesario implementar una

nueva política de control capaz de compensar las desventajas del esquema de control de *dead-beat*. Con esta finalidad se propone una ley de Control de Horizonte Recedente (CHR), que es capaz de definir una trayectoria óptima hacia la bifurcación, corrigiendo los posibles errores debidos a acciones de control fuertes definidas por el controlador dead-beat, logrando un mejor aprovechamiento de las ventajas de la identificación mixta mediante redes neuronales y filtros de Kalman.

La política de control de horizonte recedente resuelve un problema de control óptimo de horizonte finito generando una trayectoria de control de lazo abierto de los estados. La solución solo se implementa durante la primer parte de la solución y se repite en todos los instantes de tiempo. El problema de minimización a resolver es el siguiente:

$$\min \Phi = \frac{1}{2}\sum_{j=0}^{N-1}(\theta_j - \theta_{cr})^T Q(\theta_j - \theta_{cr}) + (\beta_j - \beta_{cr})^T Q_\beta(\beta - \beta_{cr}) \tag{3.11}$$

donde Φ es la función a minimizar, N la dimensión del horizonte a lo largo del cual se resuelve la minimización, θ_{cr} y β_{cr} son las coordenadas del punto de bifurcación crítico predicho por el algoritmo de Newton-Raphson contenido en el protocolo de detección de bifurcaciones, Q es una matriz positiva definida que contiene los pesos que se le dan a cada una de las soluciones θ_j y Q_β el peso correspondiente al peso de la solución de β_j. θ_j cuando $j = 0$ corresponde a la ubicación actual del sistema. El tamaño del horizonte de minimización N óptimo se determina mediante sintonización donde se prueban diferentes tamaños de horizonte hasta encontrar un valor para el que se logre convergencia en un menor número de iteraciones. El problema de optimización se resuelve mediante un algoritmo de gradiente conjugado.

3.4 Simulaciones cinéticas Monte Carlo

El resultado de la modificación del protocolo de detección de bifurcaciones se evaluará mediante su aplicación a simulaciones cinéticas Monte Carlo del sistema de referencia descrito en la sección 3.1. Dichas simulaciones se implementaron mediante el algoritmo descrito por Makeev [13-14], utilizando un programa en C++ proporcionado por el autor.

CAPITULO 4

RESULTADOS DE LA ROBUSTIFICACION

En esta sección se presentan los resultados obtenidos de la robustificación del protocolo de detección de bifurcaciones. Este proceso de robustificación se lleva a cabo en dos etapas principales, y el análisis de los resultados se hará de la misma manera: análisis de los resultados del esquema de identificación de la dinámica del sistema y análisis del desempeño de la ley de control de horizonte recedente. Todos estos resultados se referirán al modelo de campo medio de la oxidación de CO descrito en la sección 3.1.1 de la presente tesis.

4.1 Modelos polinomiales vs. Modelos de redes neuronales

En los trabajos de Anderson y col. [17] y Rico-Martínez y col. [18] se utilizaron algoritmos de mínimos cuadrados para generar modelos de tipo polinomial, que formaran parte de la etapa de identificación del protocolo de detección de bifurcaciones. Como se mencionó en la sección 2.2, este tipo de modelos resulta conveniente por su parecido con las formas normales de las bifurcaciones y por su fácil implementación computacional. Sin embargo, como se mencionó en la sección 3.3, su uso es poco recomendado para caracterizar sistemas en los que las ubicación de los estados estacionarios es casi independiente del parámetro de operación.

Los modelos de Red Neuronal Artificial (RNA) representan una alternativa a los modelos polinomiales, con el fin de buscar un procedimiento de identificación más robusto.

Las RNA's fueron entrenadas fuera de línea con los mismos conjuntos de datos que las correlaciones polinomiales, usando procedimientos de gradiente conjugado.

En las figuras 4.1 y 4.2 se muestra una comparación de los diagramas de bifurcación del modelo de RNA y polinomial con el diagrama del modelo de campo medio (Ec. 3.1-3.2). A pesar de que la regresión del modelo polinomial y el entrenamiento de la RNA se realizó con el mismo conjunto de 1335 datos provenientes de la integración del modelo de campo medio, el modelo de RNA ofrece mejores estimados del comportamiento del sistema, que el modelo polinomial. Esto se puede apreciar también en el caso del conjunto de 3750 datos (figuras 4.3 y 4.4).

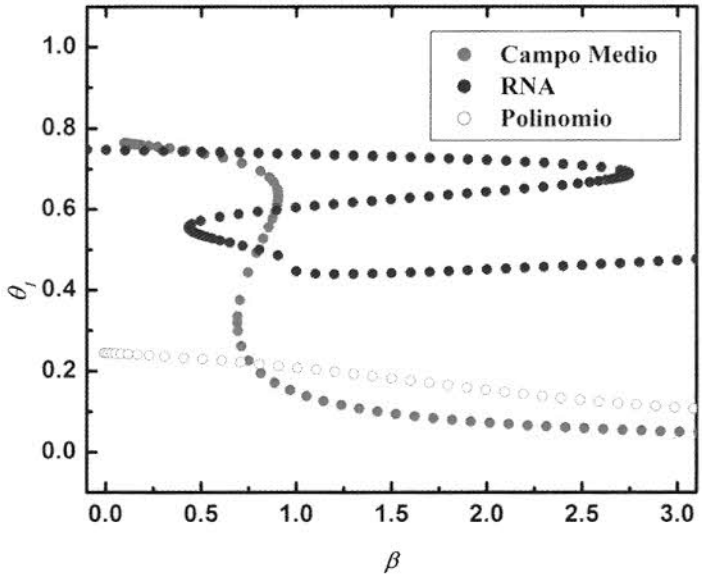

Fig. 4.1 Diagramas de bifurcación de θ_1 de los modelos de RNA y polinomial para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos.

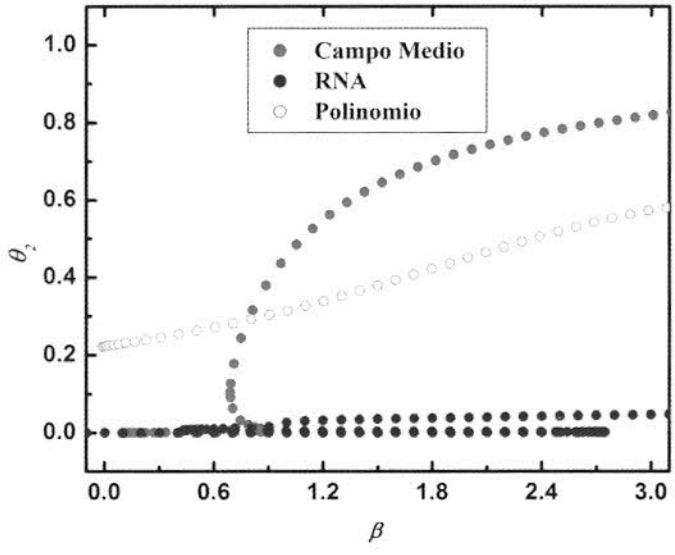

Fig. 4.2 Diagramas de bifurcación de θ_2 de los modelos de RNA y polinomial para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos.

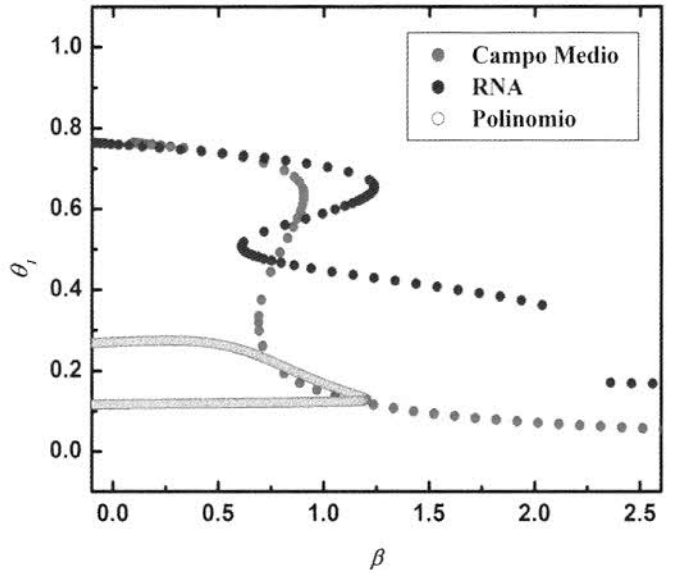

Fig. 4.3 Diagramas de bifurcación de θ_1 de los modelos de RNA y polinomial para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos.

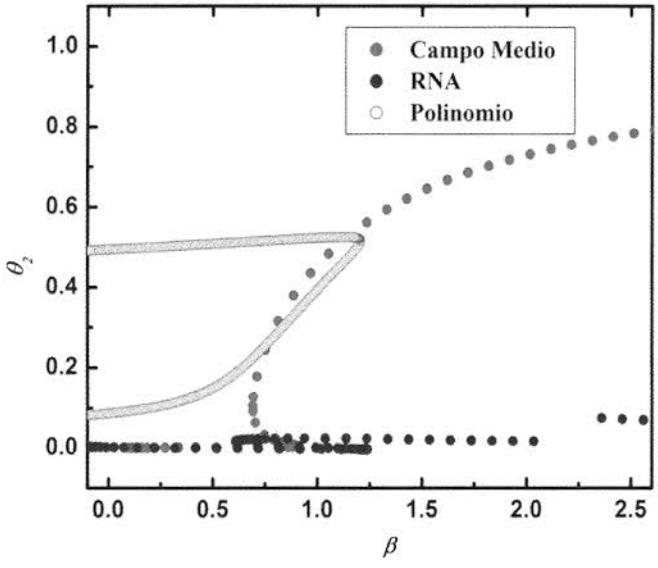

Fig. 4.4 Diagramas de bifurcación de θ_2 de los modelos de RNA y polinomial para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos.

Es importante notar, que ambos modelos de RNA logran representar el ciclo de histéresis presente en el modelo de campo medio, mientras que los polinomios no son capaces de predecir este comportamiento.

En la figuras 4.5 y 4.6 se puede también observar las capacidades predictivas de estos modelos, mediante el seguimiento de sus series de tiempo. Aquí se muestran las predicciones obtenidas por ambos modelos para dos diferentes conjuntos de condiciones iniciales. Para el primer caso (Fig. 4.5), se puede observar como el modelo de red neuronal obtiene una mejor predicción que lo polinomios. En el caso de la regresión realizada con un conjunto de 1335 puntos, no solo el polinomio obtiene una mala reproducción del modelo de campo medio, si no que diverge hacia valores fuera de los físicamente realizables.

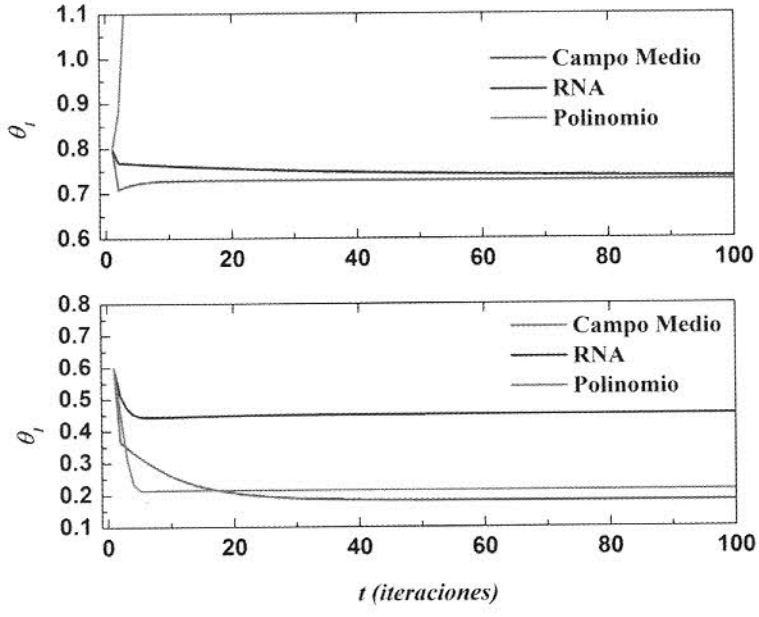

Fig. 4.5 Series de tiempo para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos: a) condiciones iniciales θ_1=0.8, θ_2=0.1 y β=0.6, b) condiciones iniciales θ_1=0.6, θ_2=0.3 y β=0.85.

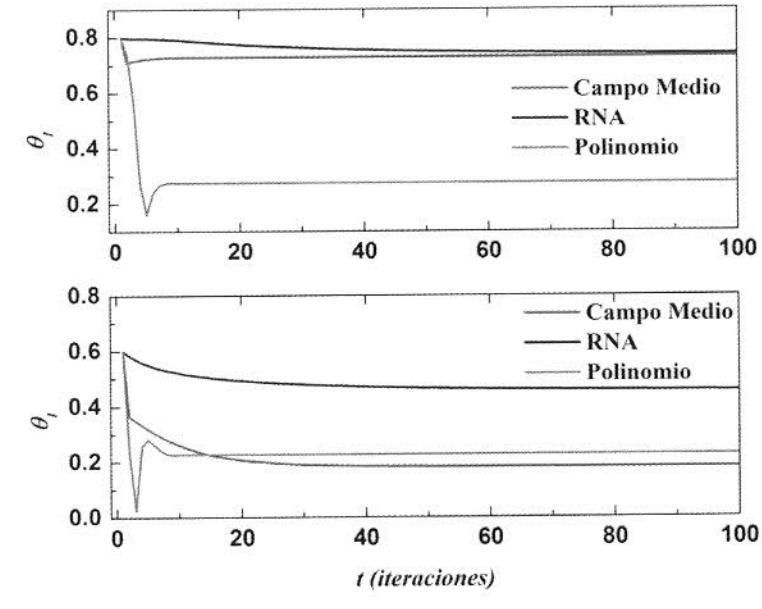

Fig. 4.6 Series de tiempo para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos: a) condiciones iniciales θ_1=0.8, θ_2=0.1 y β=0.6, b) condiciones iniciales θ_1=0.6, θ_2=0.3 y β=0.85.

Sin embargo, para el conjunto de condiciones iniciales $\theta_1=0.6$, $\theta_2=0.3$ y $\beta=0.85$ (Fig. 4.6), el modelo de RNA no logra una buena predicción de los estados del sistema, mientras que el polinomio alcanza una mejor predicción del estado estacionario del modelo de campo medio. Es decir, existen regiones en el espacio del parámetro para las cuales el polinomio presenta mejor desempeño que la RNA. Esto se debe a que la RNA, a pesar de sus comprobadas capacidades como aproximador universal, no logra reconstruir el comportamiento del sistema real por haber sido entrenada con conjuntos de datos ruidosos. Sin embargo, a pesar de esta desventaja, la RNA logra un mejor desempeño general que el modelo polinomial utilizado. Es posible también utilizar polinomios de un grado mayor que arrojen mejores predicciones que el de tercer grado utilizado, sin embargo, como se mencionó anteriormente, los polinomios no presentan un buen desempeño en regiones extendidas del parámetro para las cuales existe un cambio grande de la ubicación de los estados estacionarios con respecto del parámetro. Además, el uso de polinomios de mayor grado dejaría de tener sentido desde el punto de vista de las formas normales de las bifurcaciones.

Cabe también mencionar que el modelo de RNA logra una mejor reproducción del comportamiento transitorio del sistema, que en el caso de las figuras 4.5 y 4.6, reproduce la convergencia lenta hacia al estado estacionario, mientras que el modelo polinomial presenta una convergencia rápida, que no concuerda con la del sistema de referencia.

4.2 Modelo híbrido de RNA-Kalman

Como se puede observar en la sección anterior, los modelos polinomiales empleados en la versión original del protocolo de detección de bifurcaciones, son capaces de obtener

buenas predicciones de los estados estacionarios del sistema para algunas condiciones iniciales. Sin embargo existen condiciones iniciales que no solo pueden ocasionar una mala predicción de los estados estacionarios, sino que también pueden ocasionar una divergencia de las trayectorias de los estados del modelo.

Los modelos de RNA representan una mejor opción que los modelos polinomiales por su comportamiento general, ya que no solo logran reproducir el comportamiento transitorio del sistema, sino que también el ciclo de histéresis presente en el modelo de campo medio. Sin embargo, existen conjuntos de condiciones iniciales para los cuales los polinomios presenten una mejor representación del sistema real. Aún así, las RNA's no logran obtener una buena predicción de los estados estacionarios pertenecientes a la rama baja del diagrama de bifurcación del modelo de campo medio.

Con el fin de corregir los errores en los estimado arrojados por los modelos de RNA's, se propone el uso de un esquema híbrido de identificación consistente en una corrección de la predicción de los modelos de RNA mediante filtros de Kalman (Fig. 3.3). En la tabla 4 1 se muestran los valores de las matrices de los parámetros del filtro de Kalman utilizados para hacer los cálculos. Estos valores se eligieron de acuerdo a la metodología descrita en [30]. Los valores de la matriz Q corresponden a la covarianza del error inherente al proceso. Este error es del orden del tamaño de paso para una integración mediante el método de Euler. Los valores de la matriz R corresponden a la covarianza del error inherente a las mediciones. Debido a que las mediciones son obtenidas directamente de las simulaciones computacionales, este error se considera pequeño.

En las figuras 4.7 a 4.10 se muestran los diagramas de bifurcación de este nuevo modelo híbrido de RNA con filtros de Kalman. Aquí se puede observar que el modelo híbrido logra compensar las desviaciones que presenta el modelo de RNA mediante el esquema de filtro de Kalman, al grado que se obtiene un comportamiento prácticamente idéntico al del modelo de referencia, es decir, el modelo de campo medio. La pequeñas diferencias que se pueden presentar entre las predicciones de ambos modelos se deben a los parámetros de la RNA que dependen de una adecuada definición de los conjuntos de entrenamiento.

Tabla 4.1.- Valores de los parámetros del filtro de Kalman.

Parámetro	Conjunto de 1335 datos	Conjunto de 3750 datos
Z	1 0 0 1	1 0 0 1
T	1 0 0 1	1 0 0 1
Q	0.15 0.3 0.3 0.2	0.15 0.3 0.3 0.2
R	0.001 0.000001 0.000001 0.001	0.001 0.000001 0.000001 0.001
U	0 0	0 0
B	0 0 0 1	0 0 0 1
P_{k-1}	1.0 0 0 1.0	1.0 0 0 1.0

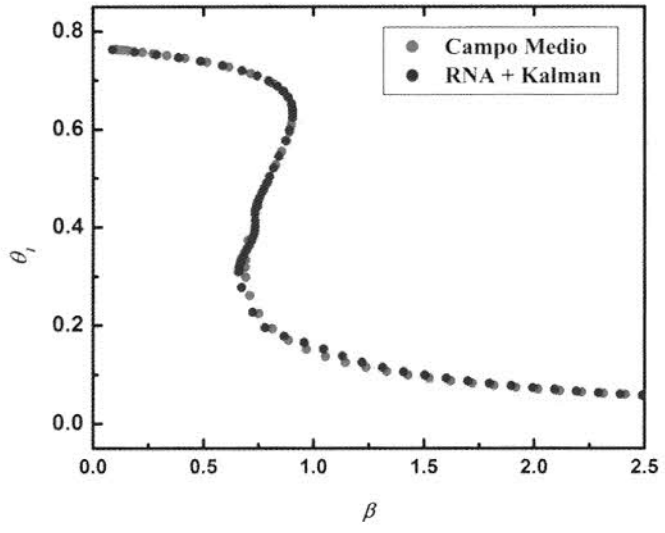

Fig. 4.7 Diagramas de bifurcación de θ_1 del modelo híbrido de RNA con filtro de Kalman para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos.

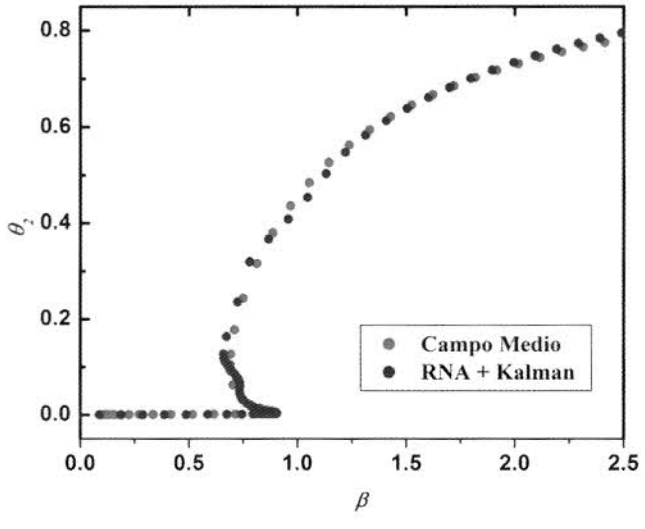

Fig. 4.8 Diagramas de bifurcación de θ_2 del modelo híbrido de RNA con filtro de Kalman para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos.

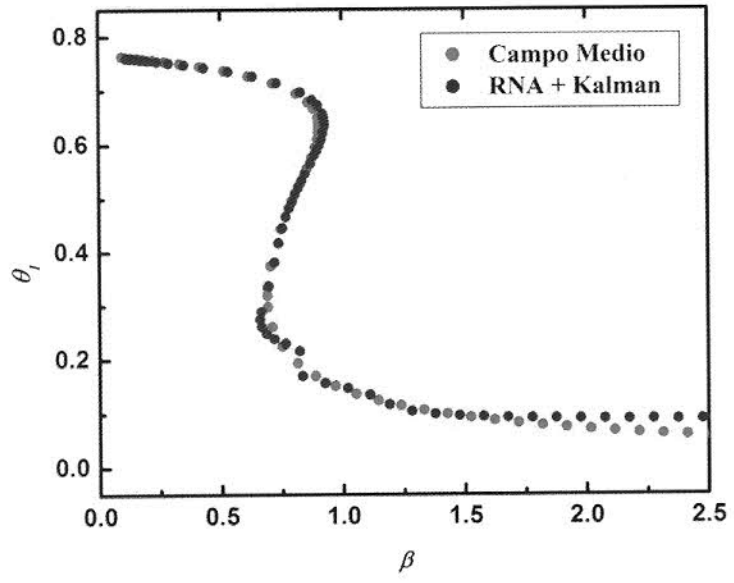

Fig. 4.9 Diagramas de bifurcación de θ_1 del modelo híbrido de RNA con filtro de Kalman para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos.

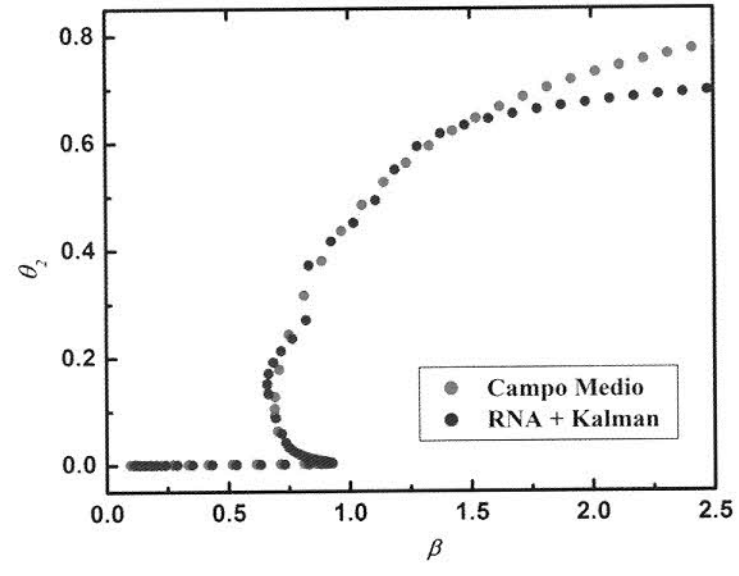

Fig. 4.10 Diagramas de bifurcación de θ_2 del modelo híbrido de RNA con filtro de Kalman para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos.

Evaluando las RNA's, el modelo híbrido e integrando el modelo de campo medio mediante el método de Runge-Kutta para obtener las series de tiempo a partir de diferentes condiciones iniciales, se puede hacer una comparación de la precisión de los estimados obtenidos (Fig. 4.11 y 4.12). Aquí se muestra que el modelo híbrido de RNA y filtro de Kalman es capaz de reproducir la dinámica del modelo de referencia, obteniendo una mejor estimado de los estados estacionarios y del comportamiento transitorio, corrigiendo las ineficiencias de la RNA. Las buenas predicciones arrojadas por este modelo hacen de éste una buena alternativa de identificación de la dinámica del sistema y representa una buena opción para sustituir los modelos polinomiales.

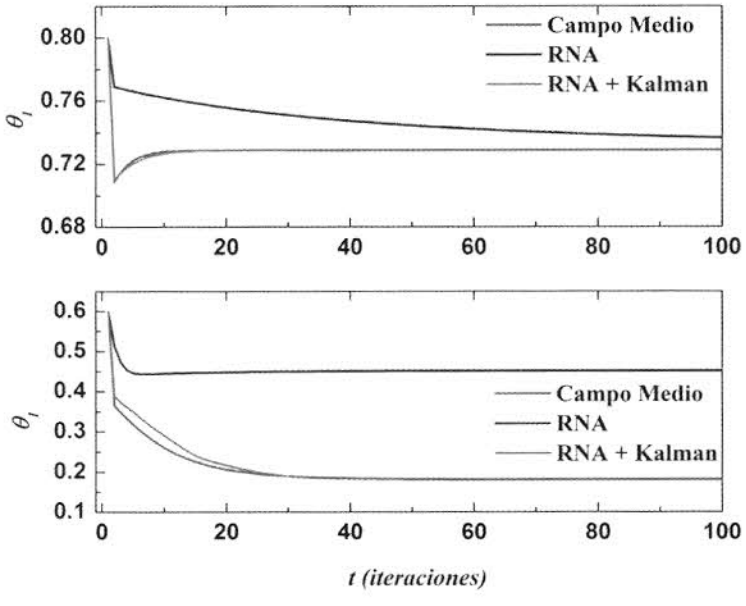

Fig. 4.11 Series de tiempo para el conjunto entrenamiento de 1335 puntos: a) condiciones iniciales θ_1=0.8, θ_2=0.1 y β=0.6, b) condiciones iniciales θ_1=0.6, θ_2=0.3 y β=0.85.

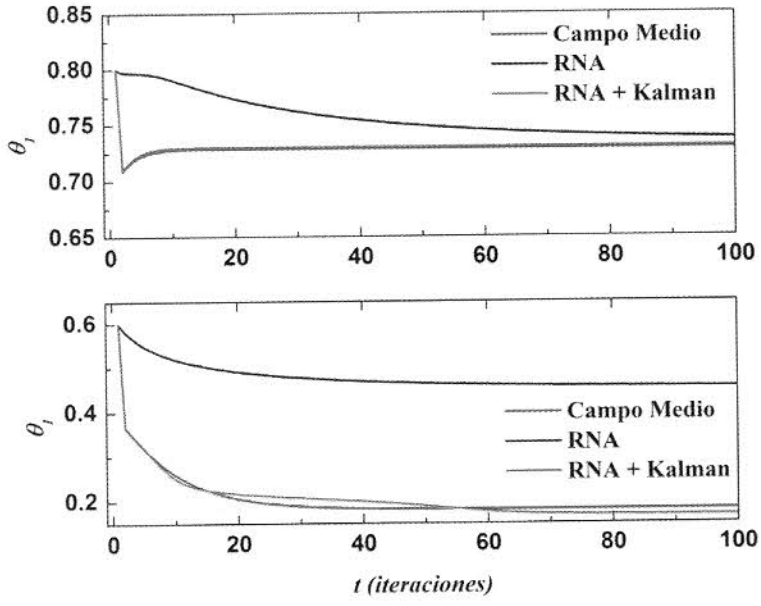

Fig. 4.12 Series de tiempo para el conjunto entrenamiento de 3750 puntos: a) condiciones iniciales θ_1=0.8, θ_2=0.1 y β=0.6, b) condiciones iniciales θ_1=0.6, θ_2=0.3 y β=0.85.

Aplicando el modelo híbrido de RNA con filtros de Kalman como método de identificación de la dinámica del sistema, el desempeño del protocolo de detección de bifurcaciones mejora considerablemente. En la figura 4.13 se muestra como para los estimados iniciales θ_1=0.7, θ_2=0.1 y β=0.6, el protocolo que hace uso del modelo híbrido alcanza en un tiempo más corto la bifurcación y exhibe una trayectoria más suave que el caso que utiliza polinomios. Para estas simulaciones se utilizan los parámetros de la RNA obtenida con el conjunto de entrenamiento de 1335 puntos debido a que es la que presenta mejores predicciones según las figuras 4.7 y 4.8. Los valores de la tolerancia de Newton-Rhapson y de convergencia a la bifurcación son obtenidos mediante sintonización. Los valores para los que se obtiene mejor convergencia hacia la bifurcación son $1 \cdot 10^{-5}$ y $1 \cdot 10^{-4}$.

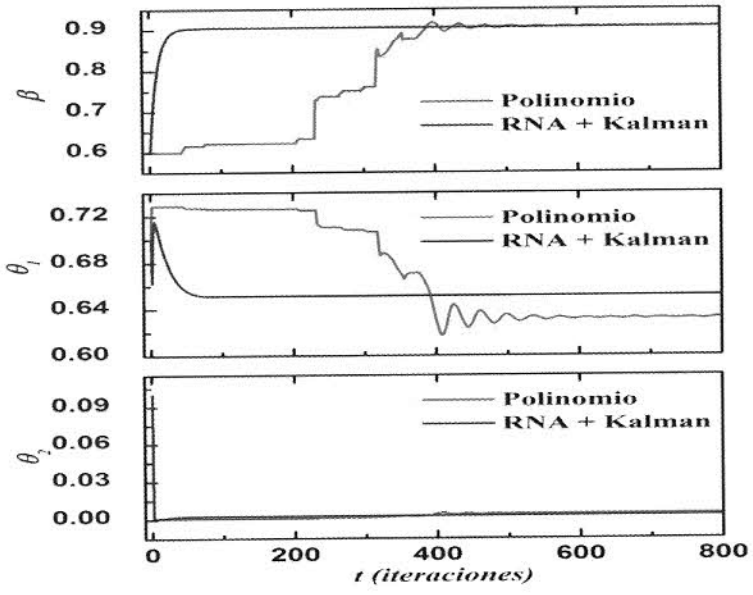

Fig. 4.13 Convergencia hacia el punto de bifurcación para el estimado inicial β=0.85 (arriba), θ_1=0.((en medio) y θ_2=0.1 (abajo).

En la figura 4.14 se ilustra en el diagrama de bifurcaciones, el desempeñc del protocolo de detección de bifurcaciones utilizando polinomios y el modelo híbrido de RNA con filtros de Kalman. Aquí se puede observar como para diferentes condiciones iniciales, la versión que hace uso del modelo híbrido logra un más rápida convergencia que la que utiliza polinomios. Sin embargo, existen condiciones iniciales para los cuales el modelo híbrido detecta bifurcaciones que no existen en el sistema de referencia (figura 4.14 abajo, puntos azules). Este problema puede ser resuelto ajustando las tolerancias del método de Newton-Rhapson y de convergencia hacia la bifurcación. Aún así, si la aproximación inicial de la RNA es muy deficiente, el modelo híbrido no logrará corregir sus predicciones. En este caso, reajustar las tolerancias no logrará corregir la convergencia hacia bifurcaciones que no existen en el sistema real.

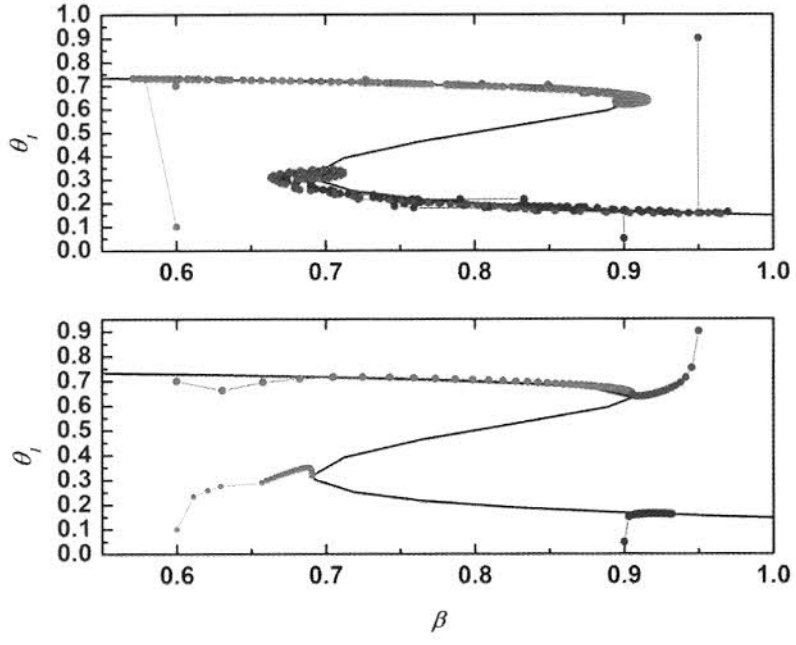

Fig. 4.14 Convergencia hacia el punto de bifurcación para diferentes estimados iniciales, utilizan lo identificación polinomial (arriba), e híbrida (abajo).

Además, la implementación del modelo híbrido no solo se puede mejorar la rapidez con la que se converge al punto de bifurcación, sino que también puede ampliar la distancia máxima a la que se pueden ubicar los estimados iniciales de las bifurcaciones, sin que la técnica pierda convergencia. En la figura 4.15 se muestra una comparación de las regiones de acción de ambas alternativas de identificación.

Como se puede observar en los anteriores resultados, el papel que juega el método de identificación de la dinámica del sistema es de gran importancia, ya que de éste depende la ubicación del punto de bifurcación que prediga el protocolo y también el tamaño de la región a la que deben pertenecer los estimados iniciales de manera que se obtenga convergencia hacia la bifurcación. Una buena identificación no solo permite una mejor predicción de la

bifurcación, sino que también permite una más rápida convergencia a la bifurcación, característica de gran importancia en sistemas experimentales y simulaciones microscópicas.

Una de las ventajas más importantes de utilizar el modelo híbrido para realizar la etapa de identificación del sistema, es que la precisión de los estimados del punto de bifurcación que obtiene es lo suficientemente buena en una mayor área de búsqueda que la de los polinomios. Esto nos permite confiar en los estimados del punto de bifurcación obtenidos en los estados transitorios del sistema, y no tener que esperar hasta alcanzar los estados estacionarios para un valor del parámetro dado, como es recomendable en el caso en que se utilizan polinomios. En otras palabras, a diferencia de los estimados de las bifurcaciones obtenidos mediante polinomios, los obtenidos mediante el modelo híbrido nos permiten aplicar una acción de control lejos de los estados estacionarios.

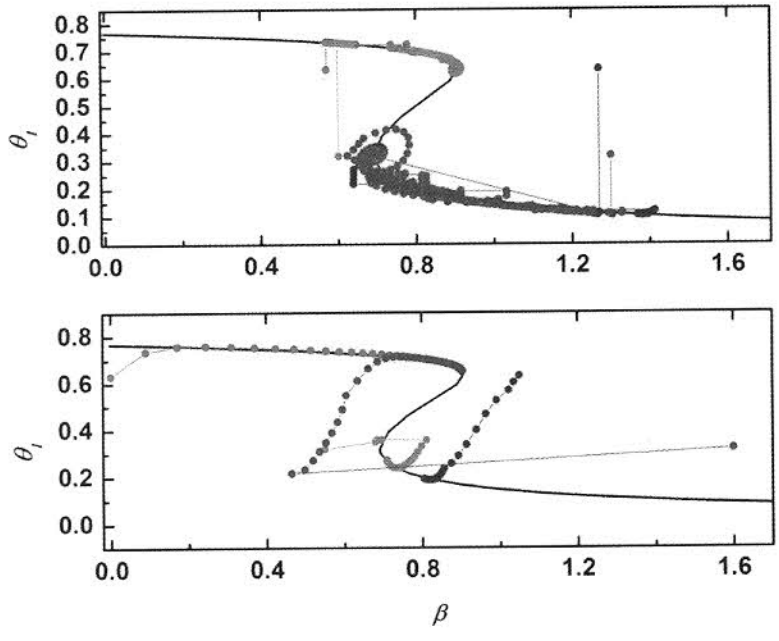

Fig. 4.15 Regiones de acción (límites de los estimados iniciales) que aseguran convergencia hacia el punto de bifurcación para una identificación polinomial (arriba), e híbrida (abajo).

4.3 Control de horizonte recedente

En la versión original del protocolo de detección de bifurcaciones se utiliza una política de control de tipo *dead-beat* con la finalidad de llevar los estados del sistema hacia el punto de bifurcación. Cuando los estimados iniciales del punto de bifurcación pertenecen a una vecindad de la bifurcación relativamente pequeña, esta ley de control es capaz de lograr convergencia. Sin embargo, esta acción de control requiere de una penalización contra acciones de control muy grandes sobre el parámetro, lo que restringe fuertemente la robustez de la técnica. En lugar de esta ley de control se utiliza una ley de control de horizonte recedente que establece una ruta de convergencia óptima del parámetro β hacia la bifurcación.

La política de control de horizonte recedente resuelve un problema de control óptimo de horizonte finito generando una trayectoria de control de lazo abierto de los estados. Para lograr esto, es suficiente resolver el problema de minimización de la ecuación 3.11. En la solución de esta ecuación, el tamaño del horizonte de minimización juega un papel importante, ya que es el que regula la existencia de acciones de control grandes que puedan afectar la robustez de la detección de bifurcaciones.

Para elegir el tamaño del horizonte de minimización del control de horizonte recedente, se realizaron simulaciones del protocolo de detección de bifurcaciones para 3 conjuntos de estimados iniciales, para diferentes tamaños del horizonte. Los resultados de estas simulaciones (tabla 4.1) muestran que para un tamaño de horizonte de 1,2 y 3 puntos se obtiene una convergencia más rápida. Sin embargo, se elige un tamaño de horizonte de 6 puntos, que presenta una convergencia casi tan rápida, pero nos asegura que no existirá una

acción de control demasiado grande que pueda llevar las trayectorias del sistema hacia otros puntos de bifurcación que no son el buscado. Para tamaño de horizontes mayores que 5, la convergencia se alcanza en el mismo número de iteraciones debido a que la solución de gradiente conjugado se repite a partir de ese tamaño de horizonte. También en la tabla 4.1 se puede observar que para un tamaño de horizonte igual a 4 se presenta un máximo en el tamaño de iteraciones antes de la convergencia. Esto se debe a que para un horizonte menor, el control induce una dinámica que obliga al sistema a la convergencia rápida, y para un horizonte mayor a este punto máximo, el control permite que el sistema se desenvuelva con su dinámica natural propia [36].

Tabla 4.2. Convergencia del protocolo para diferentes tamaños de horizonte de minimización del control de horizonte recedente.

β=0.6, θ_1=0.7 y θ_2=0.1		β=0.7, θ_1=0.3 y θ_2=0.2		β=1.6, θ_1=0.319 y θ_2=0.105	
Horizonte	**Iteraciones**	**Horizonte**	**Iteraciones**	**Horizonte**	**Iteraciones**
1	28	1	16	1	34
2	28	2	16	2	34
3	28	3	16	3	34
4	47	4	29	4	55
5	31	5	17	5	38
6	30	6	17	6	35
7	30	7	17	7	35
8	30	8	17	8	35
9	30	9	17	9	35
10	30	10	17	10	35

Aplicando el control de horizonte recedente como política de control, el desempeño del protocolo de detección de bifurcaciones mejora nuevamente. En la figura 4.16 se muestra como para los estimados iniciales θ_1=0.3, θ_2=0.2 y β=0.7, el protocolo que hace uso este controlador, alcanza en un tiempo más corto la bifurcación que el caso con control de tipo

dead-beat. Esto se debe a que el control de horizonte recedente traza la ruta óptima de convergencia hacia la bifurcación. Para estas simulaciones se utilizan valores de la tolerancia de Newton-Rhapson y de convergencia a la bifurcación de $1 \cdot 10^{-5}$ y $1 \cdot 10^{-4}$ respectivamente, un horizonte de 6 puntos y los parámetros de la RNA obtenida con el conjunto de 1335 datos

En la figura 4.17 se ilustra el desempeño del protocolo de detección de bifurcaciones utilizando ambos esquemas de control. Aquí se puede observar como para diferentes condiciones iniciales, la versión que hace uso del control de horizonte recedente logra una convergencia más rápida que la que utiliza control de dead-beat.

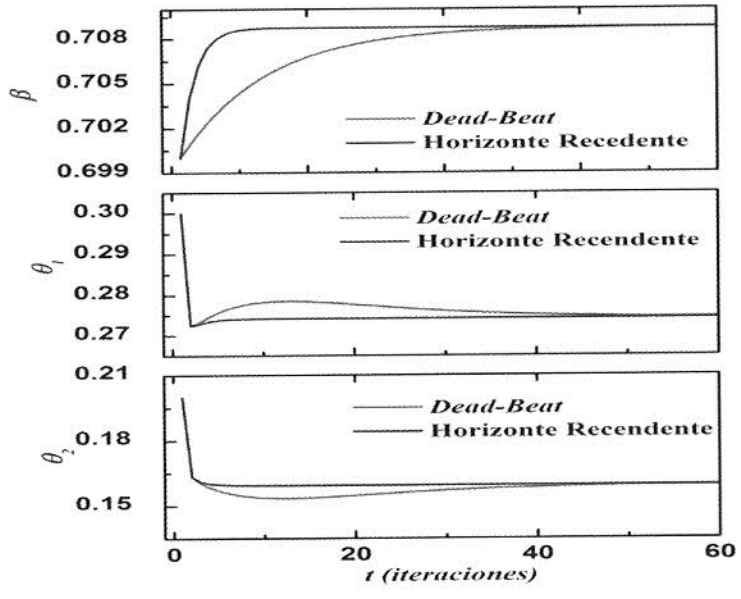

Fig. 4.16 Convergencia hacia el punto de bifurcación para el estimado inicial $\beta=0.85$ (arriba), $\theta_1=0.5$ (en medio) y $\theta_2=0.1$ (abajo).

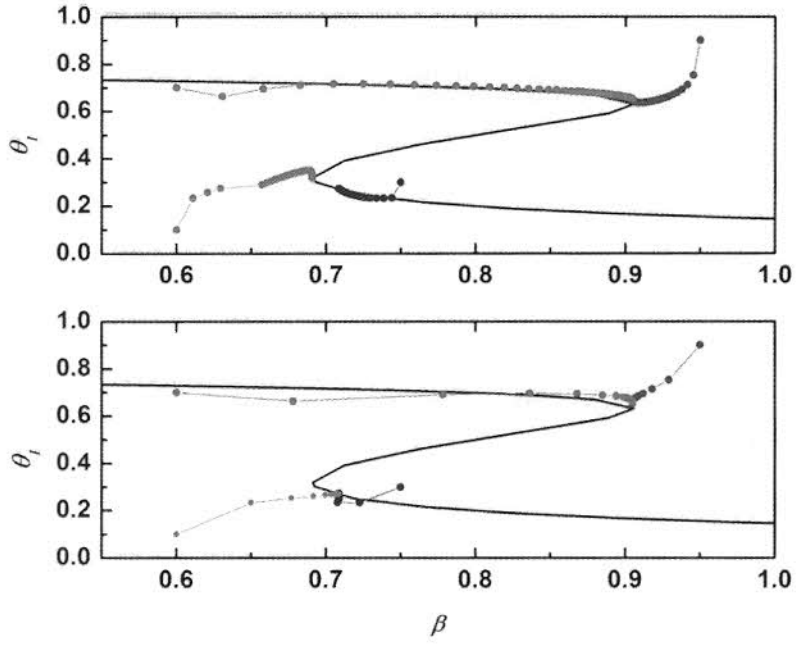

Fig. 4.17 Convergencia hacia el punto de bifurcación para diferentes estimados iniciales, utilizando control *dead-beat* (arriba), y control de horizonte recedente (abajo).

Sin embargo, existen condiciones iniciales para los cuales el protocolo modificado no logra una convergencia adecuada hacia la bifurcación. Este problema puede ser resuelto ajustando las tolerancias del método de Newton-Rhapson y de convergencia hacia la bifurcación., siempre y cuando, el modelo de RNA ofrezca una buena aproximación del sistema real.

4.4 Conclusiones preliminares

Para lograr una eficiente detección de bifurcaciones en línea, es necesario contar con una buena técnica de detección de la dinámica del sistema, capaz de generar buenos estimados de los estados estacionarios del sistema con la información que recoge en línea. La

alternativa de modelos híbridos de RNA con filtros de Kalman logra reproducir la dinámica del sistema para obtener mejores estimados que los arrojados por los modelos polinomiales utilizados.

El empleo del modelo híbrido permite obtener mejores estimados de los puntos de bifurcación, lo que se refleja en la posibilidad de ejercer una acción de control sin necesidad de aproximarse a los estados estacionarios. Gracias a que se obtienen mejores estimados de las bifurcaciones, se logra una convergencia más rápida hacia éstas, además de un robustecimiento considerable ante las condiciones iniciales de búsqueda.

La introducción del método de control de horizonte recedente al protocolo de detección de bifurcaciones, mejora el desempeño de éste, logrando una convergencia aún más rápida (entre 90 y 95% menos iteraciones) y robusteciéndola aún más ante una gran variedad de estimados iniciales de búsqueda. Además, este esquema de control evita que se apliquen acciones de control demasiado severas, siempre y cuando se lleve a cabo una sintonización apropiada del tamaño de horizonte.

CAPITULO 5

DETECCIÓN DE BIFURCACIONES EN SIMULACIONES MONTE CARLO

Como se vio en la sección anterior, es posible robustecer el protocolo de detección de bifurcaciones presentado en [17] sustituyendo la técnica de identificación polinomial por un modelo híbrido de Redes Neuronales Artificiales (RNA) con filtros de Kalman y sustituyendo el controlador de *dead-beat* por un controlador de horizonte recedente. El resultado de estas modificaciones es un protocolo robusto a las condiciones iniciales de búsqueda y de una convergencia considerablemente más rápida.

En sistemas como el modelo de campo medio de la oxidación catalítica de CO, la rapidez de convergencia del protocolo de detección de bifurcaciones no es una característica de gran importancia, ya que las simulaciones se llevan a cabo prácticamente instantáneamente. Sin embargo, existen algunos tipos de sistemas como los experimentales, simulaciones microscópicas, entre otros, para los cuales lleva un tiempo considerable alcanzar los estados estacionarios. Es para casos como éstos que la nueva versión modificada del protocolo presenta una ventaja aún mayor. El ahorro de tiempo en la caracterización de estos casos no solo se presenta en el número de pasos en los que se logra convergencia, sino que para cada uno de estos pasos, se logra hacer la predicción del punto de bifurcación antes de alcanzar el estado estacionario. Este aspecto juega un papel muy importante cuando se trata

de caracterizar sistemas en los que se requieren esfuerzos computacionales considera)les, como las simulaciones microscópicas, ya que en algunos caso, el alcanzar los est ıdos estacionarios puede tomar días.

En esta sección se presentan los resultados obtenidos de la aplicación del protocolo de detección de bifurcaciones robusto a simulaciones de tipo Monte Carlo con el fi de demostrar aplicabilidad sobre simulaciones microscópicas. Todos estos resultado s se referirán al modelo de la oxidación de CO descrito en la sección 3.1.2 de la presente tesis.

5.1 Identificación mediante modelo híbrido de RNA y filtro de Kalman

La aplicación del protocolo de detección de bifurcaciones a simulaciones Monte Carlo requiere de una etapa de identificación adecuada, ya que de ésta depende la precisión de las predicciones de los puntos críticos. Si la identificación de la dinámica del sistema, se lleva a cabo con el modelo híbrido de redes neuronales y filtros de Kalman, el tiempo de simulación puede reducirse considerablemente, lo que representa una gran ventaja en estas simulaciones que llegan a tardar hasta semanas en localizar la bifurcación utilizando metodologías convencionales.

En la sección 4.2 de la presente tesis se mostró un método híbrido de identificación en línea consistente en la corrección de las predicciones de un modelo de RNA mediante la aplicación de filtros de Kalman. El uso de esta metodología en el módulo de identificación del protocolo de detección de bifurcaciones presenta varias ventajas, como la rapidez de convergencia hacia la bifurcación y el robustecimiento ante diferentes condiciones iniciales.

Para el uso de esta metodología es necesario hacer un entrenamiento previo de una RNA con datos gruesos de simulaciones Monte Carlo, para ser usada como referencia en la identificación en línea de la dinámica. Para esto se utilizan series de tiempo obtenidas a partir del empleo de avanzadores de paso grueso sobre simulaciones Monte Carlo de baja resolución (malla de 100 × 100, $N_{RUN} = 2 \cdot 10^3$). Estas series de tiempo fueron calculadas mediante la metodología descrita por Makeev y col. en [13,14], utilizando un programa codificado en lenguaje de programación C++ proporcionado por el autor. El conjunto de datos de entrenamiento consiste en 3750 puntos pertenecientes a estas series de tiempo. Realizando el entrenamiento mediante el método del gradiente conjugado, se obtienen los parámetros de la RNA que representa una primera aproximación para el modelo híbrido que representará la parte de identificación en línea.

En la tabla 5.1 se muestran los valores de las matrices de los parámetros del filtro de Kalman utilizados para hacer los cálculos. Al igual que en la sección 4.2, estos valores se eligieron de acuerdo a la metodología descrita por Welch [30]. Se toman los mismos valores de las matrices Q y R debido a que el tamaño de paso de la integración de Euler con el que se obtuvieron las series de tiempo del modelo de campo medio, y la resolución de las simulaciones Monte Carlo fueron elegidos de manera que su error tuviera valores similares. Por lo tanto, si el orden de ambas series de tiempo es del mismo orden, puede considerarse el mismo valor de sus matrices de covarianza del error.

Tabla 5.1.- Valores de los parámetros del filtro de Kalman.

Parámetro	Conjunto de 3750 datos
Z	1 0 0 1
T	1 0 0 1
Q	0.15 0.3 0.3 0.2
R	0.001 0.000001 0.000001 0.001
U	0 0
B	0 0 0 1
P_{k-1}	1.0 0 0 1.0

Los resultados del entrenamiento previo fuera de línea se presenta en las figuras 5.1 y 5.2. Aquí se presentan los diagramas de bifurcación de la RNA entrenada con este conjunto de datos. Esta RNA logra hacer una buena primera predicción general del comportamiento de los estados estacionarios con respecto del parámetro de bifurcación. Aquí también puede observar que los estados estacionarios pertenecientes a la rama baja del diagrama de bifurcación (Fig. 5.1) pueden ser predichos adecuadamente, sin embargo, no se logran tan buenos resultados para la rama alta. Es posible mejorar los resultados con un conjunto de datos de entrenamiento con puntos distribuidos más uniforme. Para mostrar el comportamiento del protocolo ante buenas y malas aproximaciones del modelo, en este trabajo se utilizará la red ya entrenada.

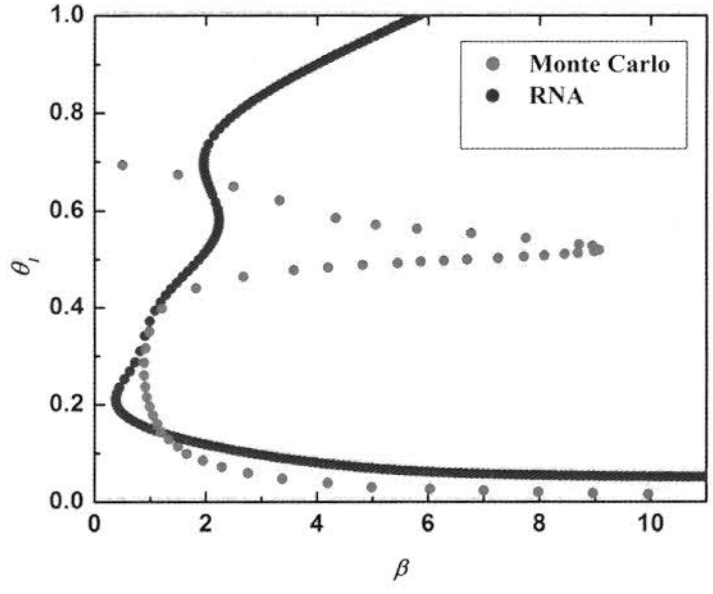

Fig. 5.1 Diagramas de bifurcación de θ_1 del modelo de RNA de las simulaciones Monte Carlo.

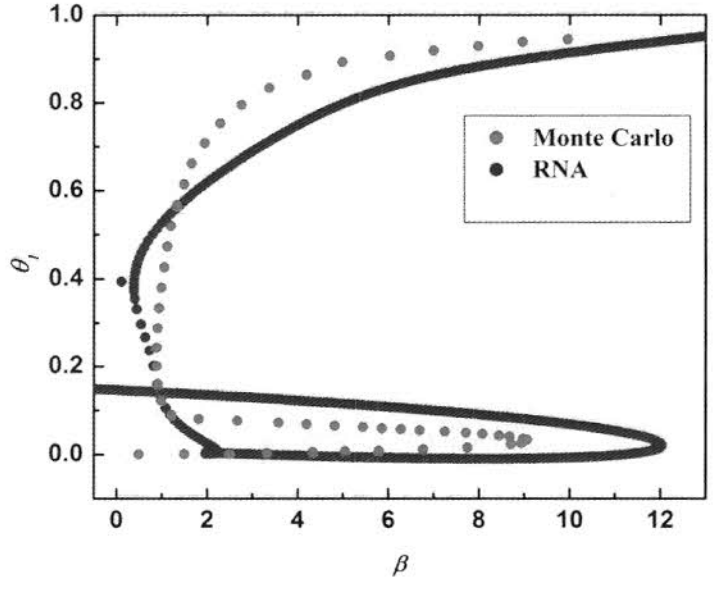

Fig. 5.2 Diagramas de bifurcación de θ_2 del modelo de RNA de las simulaciones Monte Carlo.

Mediante el uso de los filtros de Kalman del modelo híbrido, esta falta de precisión del modelo de RNA se logra corregir un poco, obteniendo así mejores aproximaciones. Esta corrección se puede apreciar en las figuras 5.3 y 5.4 donde se presentan las series de tiempo de ambas aproximaciones para dos conjuntos diferentes de condiciones iniciales. Sin embargo, a pesar de que el modelo híbrido logra corregir las aproximaciones de la RNA, el comportamiento predicho aún presenta desviaciones con respecto del sistema de referencia. Esto se debe a que la primer aproximación proporcionada por la RNA presenta desviaciones muy grandes como para que el filtro de Kalman logre compensarlas. Aún así, como en el caso del modelo de campo medio, el modelo híbrido de RNA y filtro de Kalman también representa una buena aproximación del modelo real con respecto de las RNA's, y puede ser utilizada en el protocolo de detección de bifurcaciones con el fin de obtener buenas predicciones de las bifurcaciones.

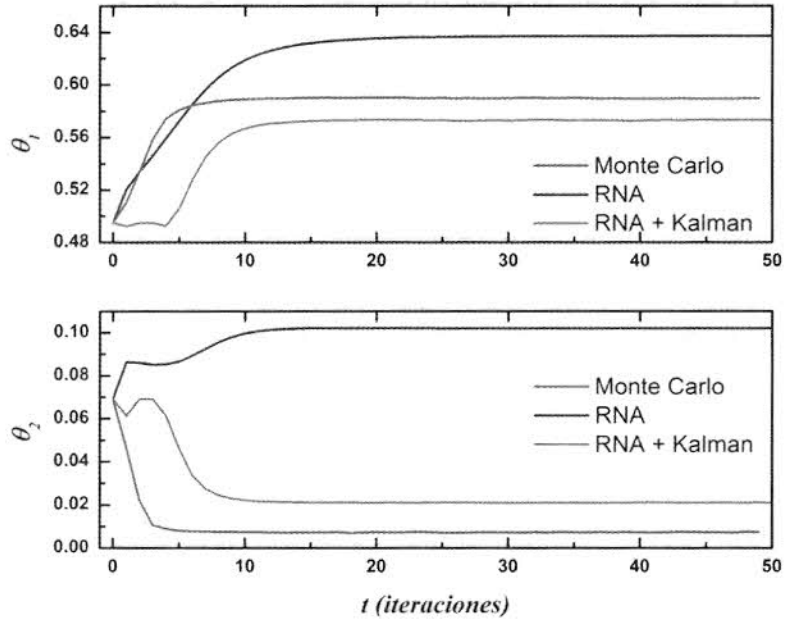

Fig. 5.3 Series de tiempo de la RNA y el modelo híbrido con condiciones iniciales θ_1=0.495, θ_2=0.069 y β=4.0.

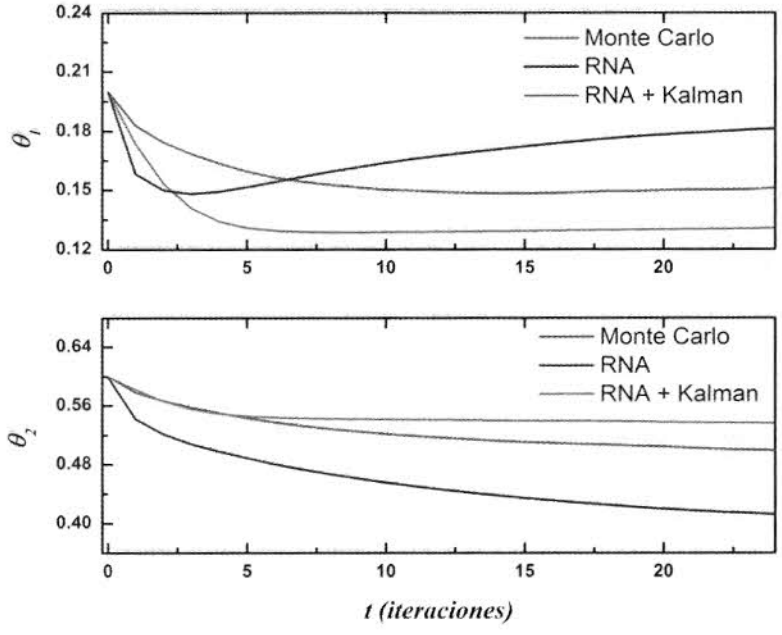

Fig. 5.4 Series de tiempo de la RNA y el modelo híbrido con condiciones iniciales θ_1=0.2, θ_2=0.6 y β=1.0.

5.2 Detección de bifurcaciones de simulaciones Monte Carlo

El modelo híbrido de RNA con filtros de Kalman de la sección anterior puede ùngir como el módulo de identificación descrito en la sección 2.2 del mismo modo que se hizc en la sección 4.2 para el modelo de campo medio, pero ahora para simulaciones microscópicas, que en nuestro caso serán simulaciones Monte Carlo. Las predicciones obtenidas por este modelo se utilizaran para obtener la ubicación del punto de bifurcación.

Los valores sintonizables del protocolo son los correspondientes a las covarianzas de Kalman (tabla 5.1), la longitud del horizonte del controlador y los valores de las tolerancias de la detección de bifurcaciones y del método de Newton-Raphson. La longitud del horizonte del controlador se elige igual a 6, como en el caso de campo medio para obtener un comportamiento similar por parte del controlador. Las tolerancias de la detección de

bifurcaciones y de Newton-Raphson se obtuvieron mediante sintonización y son de 2×10^{-2} y 5×10^{-2} respectivamente. Los valores de estas tolerancias son menores que los usados en el caso del modelo de campo medio debido a que el error de las simulaciones Monte Carlo debido a la estocasticidad es del orden de 10^{-4} o mayor para la resolución con la que están hechas las simulaciones. Este error restringe mucho la precisión con la que se pueden obtener las predicciones del punto de bifurcación.

Con estos valores de los parámetros, el protocolo de detección de bifurcaciones logra llevar al sistema hacia la bifurcación como se muestra en las figuras 5.5 y 5.6. Para varias condiciones iniciales de búsqueda, las trayectorias convergen hacia la bifurcación ubicada en $\theta_1=0.237$, $\theta_2=0.288$ y $\beta=0.909$.

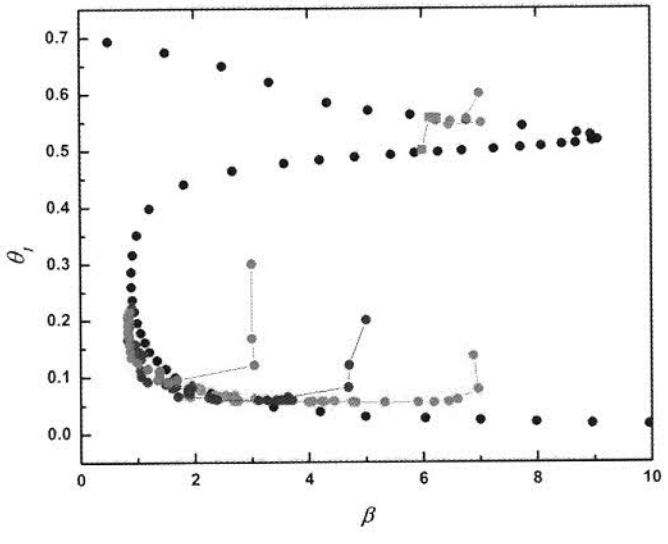

Fig. 5.5 Convergencia hacia la bifurcación θ_1 simulaciones Monte Carlo utilizando el protocolo de detección de bifurcaciones modificado.

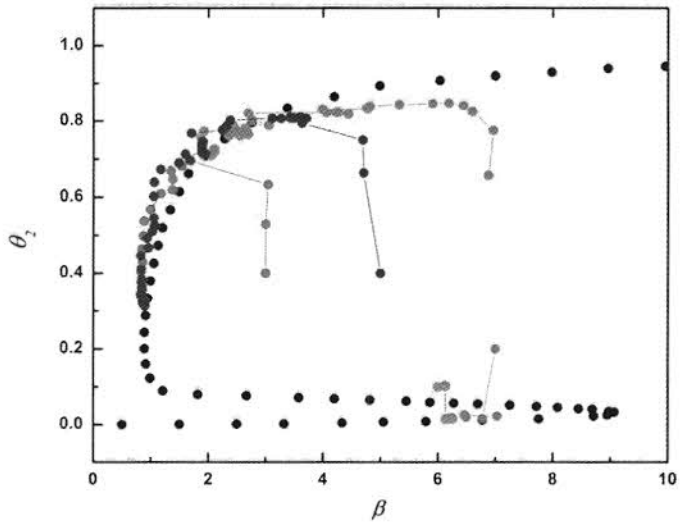

Fig. 5.6 Convergencia hacia la bifurcación θ_2 simulaciones Monte Carlo utilizando el protocolo le detección de bifurcaciones modificado.

Sin embargo, el punto de bifurcación ubicado en θ_1=0.518, θ_2=0.034 y β=9.07 no logra ser encontrado, ya que esa bifurcación no se encuentra bien caracterizada por la RNA como se puede observar en la figura 5.1. Es decir, el modelo híbrido no logra compensar las deficiencias de las aproximaciones de la RNA de modo que se logre convergencia hacia el punto de bifurcación. Aún así, para algunas condiciones de búsqueda se converge a el punto θ_1=0.556, θ_2=0.016 y β=6.2, que corresponde a una corrección del punto de bifurcación predicho por la RNA en las figuras 5.1 y 5.2 localizado en θ_1=0.584, θ_2=0.006 y β=2.238. Entonces, la distancia de la aproximación de la ubicación de la bifurcación depende principalmente de la precisión de las predicciones de la RNA. Esta precisión restringe también la tolerancia que se puede emplear en el método de Newton-Raphson para lograr

convergencia, por eso es necesario obtener una buena representación de RNA, de modo que sea posible refinar la búsqueda de la bifurcación.

En las figuras 5.7 y 5.8 se muestran la convergencia a través del tiempo para dos de estas condiciones iniciales de búsqueda. La convergencia se logra en un pequeño número de iteraciones cumpliendo con los criterios de convergencia impuestos. Cada una de estas simulaciones tuvo una duración aproximada de 3 a 6 días en una computadora portátil con procesador AMD Turion64 de doble núcleo a 1.81 GHz y 2 Gb de memoria RAM. Estos tiempos de simulación tan grandes comparados con los obtenidos para el modelo de campo medio que eran del orden de segundos, se deben principalmente a que el método de Newton-Raphson requiere utilizar las simulaciones Monte Carlo para el cálculo de las derivadas.

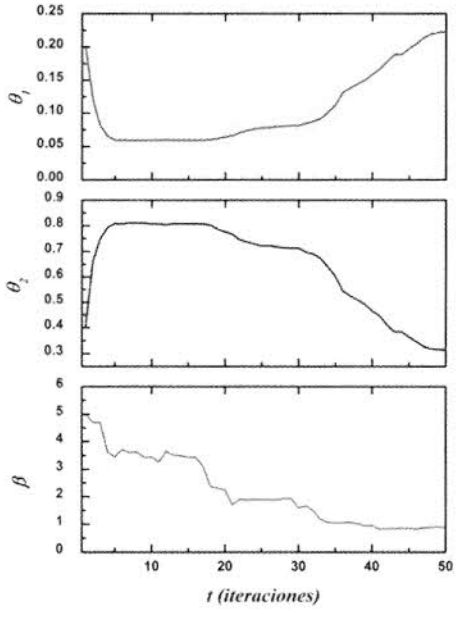

Fig. 5.7 Series de tiempo del protocolo modificado con condiciones iniciales θ_1=0.2, θ_2=0.4 y β=10.

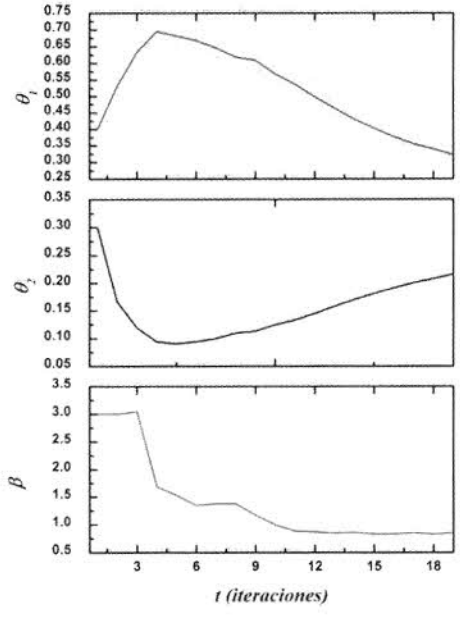

Fig. 5.8 Series de tiempo del protocolo modificado con condiciones iniciales θ_1=0.4, θ_2=0.3 y β=3.0.

5.3 Conclusiones preliminares

El protocolo de detección de bifurcaciones modificado con los modelos híbricos de RNA y filtros de Kalman y control de horizonte recedente logra hacer la detección de los puntos de bifurcación de simulaciones microscópicas en un número pequeño de iteraciones. Esto representa una gran ventaja frente al procedimiento tradicional de detección de bifurcaciones, que para este tipo de sistemas representa una inversión mucho mayor de tiempo.

El desempeño de esta técnica depende fuertemente de la precisión de las predicciones del modelo de RNA involucrado en el módulo de detección de identificación del protocolo.

Es entonces necesario obtener conjuntos de entrenamiento que representen adecuadamente el comportamiento del sistema, ya que de esto dependen la predicciones que se obtengan.

Las tolerancias del método de Newton Raphson y de la convergencia dependen de la resolución de las simulaciones Monte Carlo y de la precisión de las aproximaciones arrojadas por el modelo híbrido. A medida se que se puedan disminuir estas tolerancias, se obtendrán mejores estimados de la ubicación de la bifurcación y así se logrará una mejor y más rápida convergencia.

CAPITULO 6

CONCLUSIONES Y RECOMENDACIONES

6.1 Conclusiones

El protocolo de detección de bifurcaciones presentado por Anderson y col. [7] y Rico-Martínez y col. [18] puede ser modificado con el fin de mejorar su robustez para poder ser aplicado en la caracterización de simulaciones microscópicas. Esta modificación consistió en dos etapas principales: generación de un modelo de identificación de la dinámica del sistema en línea; y la implementación de una política de control de horizonte recedente que lleve al sistema hacia la bifurcación buscada.

El modelo de identificación usado consistió en un esquema de Redes Neuronales Artificiales (RNA) acoplado a un filtro de tipo Kalman. Este tipo de modelo logra obtener predicciones considerablemente mejores que los modelos polinomiales utilizados originalmente, e inclusive que los modelos de RNA. Esta mejora en las predicciones se deben principalmente a que se incorpora el carácter no lineal de la RNA en la estructura predictiva del filtro de Kalman. El empleo de esta técnica de identificación en línea tiene también la ventaja de no necesitar la inducción de señales de perturbación para lograr la identificación, lo que se refleja en un comportamiento robusto de la detección de las bifurcaciones. Además, esta técnica de identificación nos permite también hacer predicciones de la ubicación de la

bifurcación sin la necesidad de encontrarse en la vecindad de los estados estacionarios, lo que representa una mejora en rapidez de convergencia.

La sustitución del control de dead-beat (convergencia en el menor número de pasos) por la política de control de horizonte recedente le proporciona una mayor robustez al protocolo de detección de bifurcaciones. También nos permite una convergencia en un menor número de pasos del protocolo, lo que representa una disminución en los tiempos de simulación.

La mejora en el desempeño del protocolo de detección de bifurcaciones se probó en la caracterización de un modelo de campo medio de la oxidación catalítica de CO. Las modificaciones en el protocolo permiten una disminución de aproximadamente 90% en el tiempo de simulación con respecto a su versión original. También se presenta una convergencia suave hacia la bifurcación, que no se presentaba anteriormente. Sin embargo, si el modelo de RNA utilizado en el módulo híbrido de identificación es deficiente para caracterizar algunas regiones de mapa de bifurcación, es posible que el protocolo detecte puntos de bifurcación inexistentes en el sistema real.

La obtención de una RNA que arroje buenos aproximados de los estados del sistema es un factor importante para la determinación de tolerancia de Newton-Raphson y de la convergencia del protocolo. Entre mejor sea esta aproximación, menores pueden ser las tolerancias, y así se obtendrán mejores predicciones del punto de bifurcación.

La modificación del protocolo de detección de bifurcaciones logra el objetivo de obtener una técnica robusta capaz de hacer la detección de los puntos de bifurcación de simulaciones microscópicas en un número pequeño de iteraciones. Esta propiedad se demostró con la aplicación del protocolo a la caracterización de un modelo Monte Carlo de la oxidación catalítica de CO. Sin embargo, la rapidez de la convergencia de la técnica se ve fuertemente limitada por la necesidad de recurrir a las simulaciones microscópicas dentro del método de Newton-Raphson para el cálculo de las derivadas.

6.2 Recomendaciones

Como se observó a lo largo del trabajo, la característica que más impacto tiene en el desempeño del protocolo de detección de bifurcaciones es el módulo de identificación. Logrando una mejor identificación en línea de la dinámica del sistema, es posible mejorar la robustez de la técnica. Con este fin se recomienda la incorporación de la estructura de los filtros de Kalman *unscented* al esquema híbrido de identificación para obtener mejores predicciones de los estados.

El protocolo de detección de bifurcaciones modificado requiere de datos reales para el cálculo de las derivadas en el método de Newton-Raphson para obtener los estimados de los puntos de bifurcación. Se recomienda la búsqueda de una alternativa de identificación que no necesite de estos puntos, para así lograr tiempos de simulación mucho menores.

Se propone también probar el desempeño del protocolo en la caracterización de un sistema experimental.

También se recomienda hacer la extensión de este trabajo a bifurcaciones de codimensión 2 (dos parámetros de bifurcación). Con esto se pueden obtener mapas de bifurcación con respecto a dos parámetros y así delimitar zonas más amplias de operación para los procesos.

BIBLIOGRAFIA:

[1] L. F. Razón, R. A. Schmitz, Multiplicities and instabilities in chemically reacting systems: a review, *Chem. Eng. Sci.*, 42, 1005 - 1047(1987).

[2] R. Aris y N.R. Amundson, An analysis of chemical reactor stability and control, *Chem. Eng. Sci.* 7, 121 – 155 (1958).

[3] S. Wiggins, Global Bifurcations and Chaos, Applied Mathematical Sciences v. 73, Springer-Verlag, New York (1988).

[4] E. J. Doedel, A. R. Champneys, T. F. Fairgrieve, Y. A. Kuznetsov, B. Sandstede, and X. Wang, AUTO 97: Continuation an bifurcation software for ordinary differential equations, California Institute of Technology, Pasadena. CA (1997).

[5] Y. A. Kuznetsov and V. V. Levitin, CONTENT: A multiplatform environment for analyzing dynamical systems, Dynamical Systems Laboratory, CWI, Amsterdam 1995-1997. (ftp.cwi.nl/pub/CONTENT).

[6] A. Dhooge, W. Goeverts, and Y. A. Kuznetsov, MATCONT: A Matlab package for numerical bifurcation analysis of ODE's, Dept. of Applied Mathematics and Computer Science, Krijgslaan 281-S9, Ghent, Belgium (2003).

[7] D. T. Gillespie, Approximate accelerated stochastic simulation of chemically reacting systems, *J. Chem. Phys,* 115, 1716-1733 (2001).

[8] J. J. Lukkien, J. P. L. Segers, P. A. J. Hilbers, R. J Gelten y A. P. J. Jansen, Efficient Monte Carlo methods for the simulation of catalytic surface reactions, *Phys, Rev. E* 58, 2598-2610 (1998).

[9] R.M. Nieminen y A. P. J. Jansen, Monte Carlo simulations of surface reactions, *Appl. Catal. A.* 160, 99 (1997).

[10] D. Maroudas, Multiscale modeling of hard materials: challenges and opportunities for chemical engineering, *AIChE J.* 46, 878-882 (2000).

[11] M. Shacham, N. Brauner, G. S. Cholakov and R. P. Stateva, Property prediction by correlations based on similarity of molecular structures, *AIChE Journal* 50, 2481-2492 (2004).

[12] K.A. Fichthorn and W.H. Weinberg, Theoretical foundations of dynamical Monte Carlo simulations, *J. Chem. Phys*, 95, 1090-1096, (1991).

[13] A. G. Makeev, D. Maroudas and I, G, Kevrekidis, "Coarse" stability and bifurcation analysis using stochastic simulators: kinetic Monte Carlo examples, *J. of Chem. Phys.*, 116, 10083-10091, (2002).

[14] A. G. Makeev, D. Maroudas, A. Z. Panagiotopoulos, and I. G. Kevrekidis, "Coarse" bifurcation analysis of kinetic Monte Carlo simulators: A lattice-gas model with lateral interactions, *J. Chem. Phys.*, 117, 8229– 8240, (2002).

[15] C. I. Siettos, A. Armaou, A. G. Makeev, and I. G. Kevrekidis,, Microscopic/Stochastic timesteppers and "coarse" control: a KMC example, *AIChE J.* 49, 1922-1926 (2003).

[16] C. I, Siettos, D. Maroudas and I. G. Kevrekidis, Coarse bifurcation diagrams via microscopic simulators: A state-feedback control-based approach, *Int. J. of Bif and Chaos*, 14, 207-220, (2004).

[17] J. S. Anderson, S. Y. Shvartsman, G. Flätgen, I. G. Kevrekidis, R. Rico-Martínez and K. Krischer, Adaptive Method for the Experimental Detection of Instabilities, *Phys. Rev. Lett.*, 82, 532-535, (1999).

[18] R. Rico-Martínez, K. Krischer, G. Flätgen, J. S. Anderson and I. G. Kevrekidis, Adaptive detection of instabilities: an experimental feasibility study, *Physica D*, 176, 1-18, (2003).

[19] S. H. Strogatz, Nonlinear Dynamics and Chaos, 1st (2000), Perseus Publishing. New York.

[20] A. Uppal, W. H. Ray, and A. B. Poore, On the dynamic behavior of continuous stirred tank reactors, *Chem. Eng. Sci.* 29, 967 (1974).

[21] A. Uppal, W. H. Ray, and A. B. Poore, The classification of the dynamic behavior of continuous stirred tank reactors: Influence of reactor residence time, *Chem. Eng. Sci.* 31, 205 (1976).

[22] M. Golubitsky and D. G. Schaeffer, Singularities and groups in bifurcation theory, Vol. 1, Springer-Verlag, New York (1985).

[23] M. G. Ierapetritou, and J. G. Khinast, New stability analysis based on iterative sampling and optimization, *AIChE J.* 48, 187-192 (2002).

[24] G. Cybenko. Aproximation by superposition of a sigmoidal function. Math Control Signals Systems, 45 (1989), pp. 303-314.

[25] S. Chen, A.A. Billings, and P. M. Grant, Non-linear system identification using neural networks, *Int. J. Control*, 51, 1191-1214, (1990).

[26] S. R. Chu, R. Shoureshi, and M. Tenorio. Neural networks for system identification, *IEEE Control Systems Magazine*, 4; 31-35, (1990).

[27] A.S. Lapedes and R. M. Farber, Nonlinear signal processing using neural networks: Prediction and system modeling. Los Alamos Report LA-UR-87-2662, (1987).

[28] D. C. Psichogios and L. H. Ungar, A hybrid neural network-first principles approach to process modeling, *AIChE J.* 38, 1499-1511 (1992).

[29] H. V. Poor, An Introduction to Signal Detection and Estimation, Springer-Verlag New York.

[30] G. Welch, G. Bishop, An Introduction to the Kalman Filter Coursepack, University of North Carolina at Chapel Hill (2001).

[31] R.G. Brown and P. Y. C. Hwang, Introduction to random signals and applied Kalman filtering, 2da. Edición, John Wiley & Sons, Inc. (1992).

[32] O. L. R. Jacobs, Introduction to control theory, 2da. Edición, Oxford University Press (1993).

[33] P. S. Maybeck, Stochastic models, estimation and control, vol. 1, Academic Press Inc. (1979).

[34] J. Choi, T. H. Yeap y M, Bouchard, Nonlinear state-space modeling using recurrent multilayer perceptrons with unscented Kalman filter, *Proceedinga of the 2004 IEEE International Conference on Systems, Man and Cypernetics*.

[35] E. A. Wan y Rudolph van der Merwe, The unscented Kalman filter for nonlinear estimation, Oregon Graduate institute of science and technology, Technical report (2000).

[36] L. Acar, Some examples of the decentralized receding horizon control, *Proceedings of the 31st Conference on Decision and Control*, (1992).

[37] A. Jadbabaie and J. Hauser, On the stability of receding horizon control with general terminal cost, *IEEE Trans. On Aut. Cont.*, 50, 674-678, (2005).

[38] J. B. Rawlings and K. R. Muske, The stability of constrained receding horizon control, *IEEE Trans. On Aut. Cont.*, 38, 1512-1516, (1993).

[39] S. J. Qin y T. A. Badgwell, A survey of industrial model predictive control technology, *Control Eng. Practice* 11, 733-764 (2003).

[40] R. Findeisen, L. Imsland, F. Allgöwer, and B. A. Foss, State and output feedback nonlinear model predictive control: An overview, *European J. of Control* 9, 190-206 (2003).

[41] J. B. Rawlings, Tutorial: Model predictive control technology, *Proceedings of the American Control Conference, San Diego, California,* (1999).

[42] D. R. Cox y h. D. Miller, The theory of stochastic processes, Methuen, London (1965).

bifurcation analysis, *Physica D* 51, 342-362 (1994).

[45] C. I. Siettos, C.C. Pantelides and I.G. Kevrekidis, Enabling dynamic process simulators to perform alternative tasks: A time-stepper based toolkit for computer-aided analysis, *Ind. & Eng. Chem. Res.*, 26, 6795-6801, (2003).

[46] C. Theodoropoulos, Y. H. Qian, and I. G. Kevrekidis, Coarse stability and bifurcation analysis using time-steppers: a reaction-diffusion example, *PNAS* 97, 9840-9843 (2000).

[47] A. Bernal-Osorio, Anticontrol del caos en sistema electroquímico, Tesis ITC, Celaya, Gto. (2006).