

УДК 519.6:004.942

АЛГОРИТМ РЕШЕНИЯ ЗАДАЧИ МНОГОЦЕЛЕВОЙ ОПТИМИЗАЦИИ НА ОСНОВЕ КИНЕТИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ ХИМИЧЕСКОЙ РЕАКЦИИ

© Е. В. Антипина¹, С. А. Мустафина², А. Ф. Антипин¹

¹Стерлитамакский филиал Башкирского государственного университета,
453103, г. Стерлитамак, просп. Ленина, 49

²Башкирский государственный университет,
450076, г. Уфа, ул. Заки Валиди, 32
E-mail: stepashinaev@ya.ru

Разработан численный алгоритм определения оптимальных режимных параметров химического процесса. В общем виде сформулирована постановка задачи многоцелевой оптимизации условий проведения химического процесса. Для решения поставленной задачи приведён генетический алгоритм, в основу которого положен метод FFGA, позволяющий определить множество оптимальных решений по Парето. Проведён вычислительный эксперимент для реакции аминотетирования тиолов в целях определения оптимальной температуры и времени протекания реакции, обеспечивающих максимальную конверсию исходных веществ и максимальную селективность образования целевого продукта реакции.

Ключевые слова: многоцелевая оптимизация, генетические алгоритмы, оптимальное решение по Парето, реакция аминотетирования тиолов.

DOI: 10.15372/AUT20210613

Введение. Важнейшей задачей математического моделирования химико-технологических процессов является определение оптимальных условий их ведения, обеспечивающих достижение заданных показателей течения процесса. Для формализации задачи оптимального управления химическим процессом необходимо составить математическую модель процесса (например, в виде системы дифференциальных уравнений), выделить управляющие (варьируемые) параметры и область их изменения, а также обозначить критерий качества управления. Варьируемыми параметрами могут выступать температура реакции, начальные концентрации реагентов, время реакции, скорость подачи реагентов и т. д. Критерием оптимальности могут быть выход целевых продуктов реакции, выход примесей, конверсия исходных веществ, прибыль и т. д.

Решению задач оптимального управления химическими процессами посвящён ряд работ [1–3], в которых задаётся один критерий оптимальности. Однако на практике часто необходимо найти наилучшее решение, удовлетворяющее нескольким независимым критериям, т. е. решить задачу многоцелевой или многокритериальной оптимизации. Например, требуется определить оптимальный набор режимных параметров процесса, обеспечивающих максимальный выход продуктов реакции при минимальном содержании примесей в реакционной смеси и т. д. Задача многокритериальной оптимизации содержит несколько критериев, каждый из которых достигает оптимального значения при своём собственном наборе значений варьируемых параметров. Решение задачи многоцелевой оптимизации заключается в нахождении некоторого множества решений, каждое из которых превосходит остальные решения хотя бы по одному критерию. Такие решения являются оптимальными по Парето. Необходимость отыскания целого множества решений усложняет реализацию численных методов их поиска и ограничивает применимость большинства классических

методов оптимизации для решения задач многоцелевой оптимизации. Поэтому разработка алгоритмов решения многоцелевых оптимизационных задач является актуальной и представляет практический интерес.

Большинство методов решения задач многоцелевой оптимизации сводится к переходу от многокритериальной задачи к однокритериальной, т. е. к скаляризации. Данная группа методов даёт хорошие результаты в тех случаях, когда имеется достаточно оснований считать определённый критерий важнее другого, либо возможно однозначно установить значения для критериев, которые переводятся в разряд ограничений задачи [4, 5]. В общем случае выбор результирующего критерия требует от исследователя проведения сложного анализа процесса хотя бы из физико-химических соображений. Кроме того, методы скаляризации трудноприменимы в тех случаях, когда критерии оптимизации являются нелинейными функциями.

В настоящее время для решения задач многоцелевой оптимизации в различных областях знаний находят широкое применение генетические алгоритмы, имитирующие в ходе поиска решения эволюционные процессы смены поколений [6, 7]. Применение генетических алгоритмов позволяет сократить перебор огромного множества возможных решений и существенно снизить размерность решаемой задачи многокритериальной оптимизации. Генетические алгоритмы в своей работе используют лишь значения критериев и не требуют вычисления производных целевых функций [8]. К наиболее распространённым генетическим алгоритмам многоцелевой оптимизации, основанным на принципах парето-доминирования, относятся VEGA (Vector Evaluated Genetic Algorithm) [9], FFGA (Fonseca and Fleming's Multiobjective Genetic Algorithm) [10], SPEA (Strength Pareto Evolutionary) и его модификация SPEA-2 [11], NSGA (Non-dominated Sorting Genetic Algorithm) и его модификация NSGA-2 [12]. Данные алгоритмы различаются подходами к реализации методов селекции и определения приспособленности.

Постановка задачи. Пусть динамическое изменение химического процесса на интервале $[0, t_1]$ описывается системой обыкновенных дифференциальных уравнений [13]

$$\frac{dx_i}{dt} = f_i(x(t), u, t) \quad (1)$$

с начальными условиями

$$x_i(0) = x_i^0, \quad i = \overline{1, n}, \quad (2)$$

где $x(t) = (x_1(t), x_2(t), \dots, x_n(t))^T$ — вектор концентраций веществ; $u = (u_1, u_2, \dots, u_r) \in U$ — вектор параметров управления; $U = \{[a_j, b_j] \mid a_j \leq u_j \leq b_j, j = \overline{1, r}\}$ — множество допустимых значений параметров управления; t — время; $f_i(x(t), u, t)$ — непрерывные функции вместе со своими частными производными.

Пусть задан вектор критериев оптимизации $Q(u) = (Q_1(u), Q_2(u), \dots, Q_m(u))$.

Требуется для химического процесса, описываемого системой дифференциальных уравнений (1) с начальными условиями (2), на интервале $[0, t_1]$ определить такой вектор параметров управления $u^* \in U$, при котором каждый компонент вектора критериев оптимизации достигает своего максимального (минимального) значения:

$$Q(u) = (Q_1(u), Q_2(u), \dots, Q_m(u)) \rightarrow \max(\min). \quad (3)$$

Будем рассматривать задачу на максимум критерия (3). Для того чтобы решить задачу на минимум, нужно заменить знак перед j -м критерием оптимизации ($j = \overline{1, m}$) на противоположный, т. е.

$$Q_j(u^*) = \min_{u \in U} Q_j(u) = - \max_{u \in U} [-Q_j(u)], \quad j = \overline{1, m}.$$

Генетический алгоритм решения задачи многоцелевой оптимизации условий проведения химической реакции. Сформулируем генетический алгоритм решения задачи многоцелевой оптимизации условий проведения химической реакции на основе метода FFGA.

Для этого приведём основные понятия концепции доминирования по Парето, являющиеся основополагающими в теории многокритериального выбора [14].

Решение $x \in U$ называется эффективным (недоминируемым), если в U не существует решения y , которое по критериям оптимизации было бы не хуже, чем x (т. е. $Q_i(y) \geq Q_i(x)$), и, по крайней мере, по одному j -му критерию было бы строго лучше, чем x , т. е. $Q_j(y) > Q_j(x)$.

Решение x доминирует над решением y ($x \succ y$), если $Q(x) > Q(y)$.

Если решение x недоминируемо относительно U , то оно называется Парето-оптимальным, т. е. если не существует $y \in U: y \succ x$, то x является Парето-оптимальным.

Множество всех эффективных точек называется множеством Парето в пространстве переменных, а их образ в критериальном пространстве — фронтом Парето.

В методе FFGA применяется процедура ранжирования особей на основе понятия Парето-доминирования, при этом каждой i -й особи назначается ранг $r(i)$ по правилу [7]

$$r(i) = 1 + dr, \quad (4)$$

где dr — количество доминирующих решений.

Пусть математическим аналогом популяции выступают наборы варьируемых параметров:

$$w^j = (w_1^j, w_2^j, \dots, w_r^j), \quad j = \overline{1, P},$$

где P — размер популяции.

Каждый вектор w^j представляет собой особь, а элемент вектора называется «геном».

Теперь сформулируем генетический алгоритм решения задачи многоцелевой оптимизации условий проведения химической реакции.

Шаг 1. Формирование начальной популяции $w^j(0) = (w_1^j(0), w_2^j(0), \dots, w_r^j(0))$, $j = \overline{1, P}$, ввод номера текущей популяции $k = 0$ и максимального числа итераций $iter$. Начальные значения параметров генерируются случайным образом из области допустимых значений $U = \{[a_i, b_i] \mid a_i \leq w_i^j(0) \leq b_i, i = \overline{1, r}, j = \overline{1, P}\}$.

Шаг 2. Нахождение приспособленности. Для каждой особи $w^j(k)$ вычислить ранг по формуле (4). Для вычисления значения критерия Q_j ($j = \overline{1, m}$) необходимо найти численное решение системы дифференциальных уравнений (1) с начальными условиями (2). Наиболее приспособленной особи будет соответствовать наименьший ранг, наименее приспособленной особи — наибольший ранг.

Шаг 3. Селекция. Из текущей популяции $w^j(k)$ сформировать множество наиболее приспособленных особей, имеющих наименьший ранг. Из данного множества с помощью оператора селекции выбрать две особи $u_{par1}(k)$, $u_{par2}(k)$ для последующего скрещивания. В качестве оператора селекции можно выбрать один из операторов: турнирный отбор, рулетку, панмиксию [15, 16].

Шаг 4. Скрещивание. Генерируются две новые особи-потомки $u_{pot1}(k)$, $u_{pot2}(k)$ путём применения одного из операторов кроссовера (арифметический, линейный, дискретный) [15, 16].

Шаг 5. Мутация. Полученные на предыдущем шаге особи подвергаются действию одного из операторов мутации (случайной и неравномерной [15, 16]) для преодоления попадания решения в точку локального экстремума. Определить для каждой особи-мутанта $u_{mut1}(k)$, $u_{mut2}(k)$ значение приспособленности путём вычисления рангов.

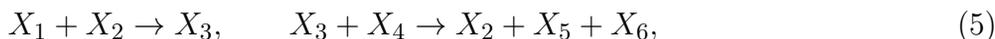
Шаг 6. Обновление популяции. Из текущей популяции отобрать особи с наименьшей приспособленностью $u_{bad}^l(k)$, $l = \overline{1, q}$, где q — количество особей с наименьшей приспособленностью. Из особей-потомков, подвергшихся действию оператора мутации $u_{mut1}(k)$, $u_{mut2}(k)$, выбрать наилучшую и заменить ею случайно выбранную особь из набора $u_{bad}^l(k)$, $l = \overline{1, q}$. Объединить множество $u_{bad}^l(k)$ с остальной частью текущей популяции $u^j(k)$.

Шаг 7. Проверка окончания поиска решения. Если $k \leq \text{iter}$, то $k := k + 1$ и перейти на шаг 3. В противном случае из последней популяции выбрать множество особей с наименьшим рангом. Полученный набор векторов будет представлять собой приближённое решение задачи многоцелевой оптимизации условий проведения химической реакции.

Параметры генетического алгоритма, такие как размер популяции, максимальное число итераций, оператор селекции, оператор скрещивания, оператор мутации, определяются в ходе выполнения серии вычислительных экспериментов путём выбора их наборов, при которых достигаются наибольшие значения критериев оптимизации.

Вычислительный эксперимент. Используя сформулированный алгоритм, решим задачу многоцелевой оптимизации для реакции аминотетирования тиолов.

Азот- и серосодержащие органические соединения находят широкое применение в качестве антиокислительных, противокоррозионных, противоизносных присадок к топливам и маслам, а также эффективных средств защиты растений. В Уфимском федеральном исследовательском центре РАН в лаборатории гетероатомных соединений проведены экспериментальные исследования реакции аминотетирования тиолов с помощью тетраметилметандиамина [17]. Механизм данной реакции описывается совокупностью стадий:



где $X_1 = \text{N}_2(\text{CH}_3)_4$, $X_2 = \text{Sm}$, $X_3 = \text{N}_2(\text{CH}_3)_4 \cdot [\text{Sm}]$, $X_4 = \text{HSC}_5\text{H}_{11}$, $X_5 = (\text{CH}_3)_2\text{NSC}_5\text{H}_{11}$, $X_6 = (\text{CH}_3)_2\text{NH}$.

Кинетические уравнения скоростей стадий реакции определены по закону действующих масс:

$$\omega_1 = k_1 x_1 x_2, \quad \omega_2 = k_2 x_3 x_4, \quad (6)$$

где x_i — концентрация вещества X_i ($i = \overline{1, 6}$) (моль/л); k_1, k_2 — кинетические константы реакции (л/(моль · ч)), рассчитываемые согласно уравнению Аррениуса:

$$k_j = k_{0j} \exp\left(-\frac{E_j}{RT}\right), \quad j = 1, 2,$$

где k_{0j} — предэкспоненциальный множитель (л/(моль · ч)); E_j — энергия активации j -й стадии (Дж/моль); R — универсальная газовая постоянная (Дж/(моль · К)); T — температура протекания реакции (К). Численные значения кинетических параметров реакции (5) равны [18]: $k_1 = 8,77$ л/(моль · ч), $k_2 = 10,6$ л/(моль · ч), $E_1 = 68617,6$ Дж/моль, $E_2 = 34727,2$ Дж/моль.

Динамическое изменение концентраций веществ исследуемой реакции описывается системой обыкновенных дифференциальных уравнений

$$\frac{dx_i}{dt} = \sum_{j=1}^2 v_{ij} \omega_j, \quad i = \overline{1, 6}, \quad (7)$$

с начальными условиями

$$x_i(0) = x_i^0, \quad i = \overline{1, 6}, \quad (8)$$

где v_{ij} — элементы матрицы стехиометрических коэффициентов, приведённой в табл. 1.

Таблица 1

Матрица стехиометрических коэффициентов (v_{ij}) реакции (5)

| Вещества реакции | ω_1 | ω_2 |
|------------------|------------|------------|
| X_1 | -1 | 0 |
| X_2 | -1 | 1 |
| X_3 | 1 | -1 |
| X_4 | 0 | -1 |
| X_5 | 0 | 1 |
| X_6 | 0 | 1 |

Пусть варьируемыми параметрами управления являются время протекания реакции t_1 и температура T .

Допустимые значения параметров управления, как правило, имеют ограничения, определяемые из технологических соображений производства, и могут быть заданы в виде неравенств

$$293 \text{ K} \leq T \leq 333 \text{ K}, \quad (9)$$

$$0 \text{ ч} \leq t_1 \leq 8 \text{ ч}. \quad (10)$$

Целевым продуктом реакции (5) является вещество X_5 . Поскольку выход X_5 зависит от селективности его образования и конверсии исходных веществ X_1 , X_2 , X_4 , то в качестве критериев оптимизации условий проведения реакции (5) можно рассматривать следующие два критерия:

1) селективность образования целевого вещества X_5 в конце реакции максимальная:

$$Q_1(t_1, T) \rightarrow \max; \quad (11)$$

2) конверсия исходных веществ X_1 , X_2 , X_4 в конце реакции максимальная:

$$Q_2(t_1, T) = 1 - \frac{x_1(t_1) + x_2(t_1) + x_4(t_1)}{x_1(0) + x_2(0) + x_4(0)} \rightarrow \max. \quad (12)$$

Начальные концентрации веществ реакции взяты из работы [18] и принимают следующие значения (моль/л):

$$x_1(0) = 0,445, \quad x_2(0) = 0,223, \quad x_3(0) = 0, \quad x_4(0) = 0,367, \quad x_5(0) = x_6(0) = 0. \quad (13)$$

Сформулируем оптимизационную задачу для реакции (5) следующим образом. Необходимо определить температуру T и время t_1 протекания реакции, описываемой системой дифференциальных уравнений (7) с начальными условиями (13), с учётом ограничений на параметры управления (9), (10), доставляющие максимальное значение критериям оптимизации (11), (12).

Для автоматизации поиска решения поставленной задачи в среде визуального программирования Delphi разработана программа на основе сформулированного пошагово генетического алгоритма решения задачи многоцелевой оптимизации.

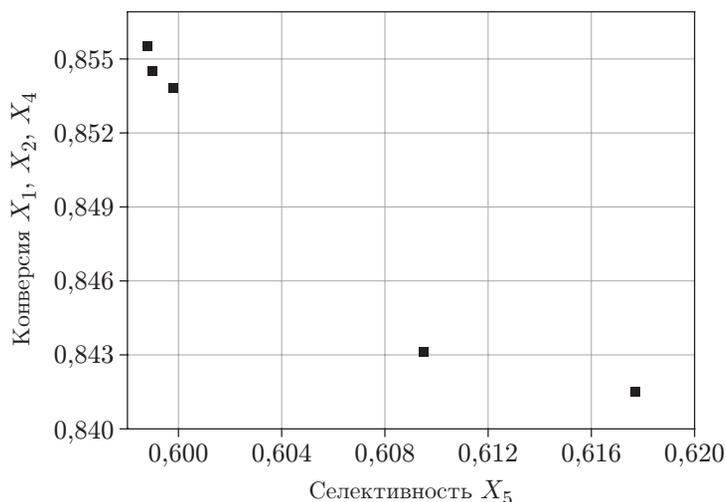
Для расчёта приспособленности особей система дифференциальных уравнений (7) с начальными условиями (13) была решена численно методом Рунге — Кутты четвёртого порядка точности.

В ходе решения оптимизационной задачи проведена серия вычислительных экспериментов с различными наборами параметров генетического алгоритма: размер популяции

Таблица 2

Оптимальные режимные параметры для реакции аминотилирования тиолов

| № п/п | t_1 , ч | T , К | Конверсия исходных веществ | Селективность образования X_5 |
|-------|-----------|---------|----------------------------|---------------------------------|
| 1 | 0,3664 | 332,48 | 0,8555 | 0,5988 |
| 2 | 0,5095 | 324,59 | 0,8545 | 0,5990 |
| 3 | 0,5339 | 322,87 | 0,8538 | 0,5998 |
| 4 | 0,3653 | 324,16 | 0,8431 | 0,6095 |
| 5 | 0,2273 | 331,59 | 0,8415 | 0,6177 |



Фронт Парето для реакции аминотилирования тиолов

варьировался от 30 до 100 с шагом 10, число итераций изменялось от 300 до 1000 с шагом 100. Применялись операторы селекции — турнирный отбор и рулетка, операторы кроссовера — арифметический и линейный, операторы мутации — случайной и неравномерной. В результате проведенных расчетов установлено, что наибольшие значения критериев оптимизации (11), (12) обеспечивает следующий набор параметров генетического алгоритма: размер популяции $P = 60$, максимальное количество итераций $iter = 1000$, оператор селекции — турнирный отбор, оператор скрещивания — арифметический кроссовер, оператор мутации — случайная мутация.

Результаты решения задачи многоцелевой оптимизации условий проведения реакции (5) показали, что для обеспечения максимальной селективности продукта реакции X_5 и максимальной конверсии исходных веществ X_1, X_2, X_4 необходимо придерживаться пяти режимов протекания реакции (табл. 2). Фронт Парето приведен на рисунке.

По результатам расчета можно сделать вывод, что оптимальными условиями проведения реакции аминотилирования тиолов являются:

- 1) время протекания реакции от 0,2273 до 0,5339 ч;
- 2) температура от 322,87 до 332,48 К.

Решение о применении конкретных оптимальных режимных параметров для реакции аминотилирования тиолов принимается экспертом на основе степени значимости критериев оптимизации.

Заключение. Таким образом, сформулированный в работе генетический алгоритм позволяет найти приближенное решение задачи многоцелевой оптимизации для химических процессов. Алгоритм основан на методе FFGA, который опирается на концепцию

доминирования по Парето. Результатом работы алгоритма является множество оптимальных решений по Парето. Выбор конкретного оптимального режима химического процесса в качестве конечного решения предоставляется эксперту. По сравнению с классическими методами оптимизации важным преимуществом генетического алгоритма являются относительно небольшие временные затраты на вычисления.

На основе сформулированного алгоритма разработана программа, с помощью которой проведён вычислительный эксперимент для промышленно значимой реакции аминотетирования тиолов. Рассчитаны оптимальное время протекания реакции и оптимальная температура, при которых достигаются максимальная конверсия исходных веществ и максимальная селективность образования целевого продукта реакции.

Финансирование. Исследование выполнено при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (код FZWI-2020-0027).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Biegler L. T.** Integrated optimization strategies for dynamic process operations // *Theor. Found. Chem. Eng.* 2017. **51**, N 6. P. 910–927.
2. **Емельянов И. И., Зиятдинов Н. Н., Островский Г. М.** Синтез оптимальных одностадийных сетей теплообмена химико-технологических систем // *Вестн. технологич. ун-та.* 2016. **19**, № 17. С. 132–137.
3. **Антипина Е. В., Мустафина С. И., Антипин А. Ф., Мустафина С. А.** Численный алгоритм решения задачи оптимального управления с терминальными ограничениями для динамических систем // *Автометрия.* 2020. **56**, № 6. С. 132–140. DOI: 10.15372/AUT20200615.
4. **Островский Г. М., Волин Ю. М.** Многокритериальная оптимизация технологических процессов в условиях неопределённости // *Автоматика и телемеханика.* 2007. № 3. С. 165–180.
5. **Карпенко А. П.** Современные алгоритмы поисковой оптимизации. Алгоритмы, вдохновлённые природой: Учеб. пособие. М.: Изд-во МГТУ им. Н. Э. Баумана, 2014. 446 с.
6. **Полковникова Н. А., Курейчик В. М.** Многокритериальная оптимизация на основе эволюционных алгоритмов // *Изв. ЮФУ. Сер. Технические науки.* 2015. № 2. С. 149–162.
7. **Белецкая С. Ю., Асанов Ю. А., Поваляев А. Д., Гаганов А. В.** Исследование эффективности генетических алгоритмов многокритериальной оптимизации // *Вестн. Воронеж. гос. техн. ун-та.* 2015. **11**, № 1. С. 24–27.
8. **Антипина Е. В., Антипин А. Ф.** Алгоритм расчёта оптимальных начальных концентраций веществ химических реакций // *Вестн. Технолог. ун-та.* 2017. **20**, № 13. С. 84–87.
9. **Coello C. A.** A comprehensive survey of evolutionary-based multiobjective optimization techniques // *Knowledge and Information Systems.* 1999. **1**, N 3. P. 269–308.
10. **Fonseca C. M., Fleming P. J.** Multiobjective optimization and multiple constraint handling with evolutionary algorithms. I: A unified formulation // *IEEE Transactions on Systems, Man, and Cybernetics. Pt A: Systems and Humans.* 1998. **28**, Iss. 1. P. 26–37.
11. **Zitzler E., Thiele L.** Multiobjective evolutionary algorithms: A comparative case study and the strength pareto approach // *IEEE Transactions on Evolutionary Computation.* 1999. **3**, N 4. P. 257–271.
12. **Deb K., Pratap A., Agarwal S., Meyarivan T.** A fast and elitist multiobjective genetic algorithm: NSGA II // *IEEE Transactions on Evolutionary Computation.* 2002. **6**, Iss. 2. P. 182–197.
13. **Байтимерова А. И., Степашина Е. В., Мустафина С. А.** Математическая модель процесса в РИС на двудольном графе // *Обозрение прикладной и промышленной математики.* 2010. **17**, № 3. С. 462.

14. **Поудиновский В. В., Ногин В. Д.** Парето-оптимальные решения многокритериальных задач. М.: Физматлит, 2007. 256 с.
15. **Пантелеев А. В., Скавинская Д. В.** Метаэвристические алгоритмы глобальной оптимизации. М.: Вузовская книга, 2019. 332 с.
16. **Herrera F., Lozano M., Verdegay J. L.** Tackling real-coded genetic algorithms: Operators and tools for the behaviour analysis // Artificial Intell. Rev. 1998. **12**, N 4. P. 265–319.
17. **Хайруллина Р. Р., Акманов Б. Ф., Тюмкина Т. В. и др.** N,N,N',N'-тетраметилметандиамин — эффективный реагент для аминометилирования тиолов // Журнал органической химии. 2012. **48**, Вып. 2. С. 189–193.
18. **Новичкова А. В.** Численный анализ реакционной способности олефинов и алюминийорганических соединений на основе кинетических моделей частных и общих реакций: Дисс. ... канд. физ.-мат. наук. Уфа, 2015. 110 с.

Поступила в редакцию 08.09.2021

После доработки 04.10.2021

Принята к публикации 11.10.2021
