

УДК 517.977+544.4

ПОИСК ОПТИМАЛЬНОГО ТЕМПЕРАТУРНОГО РЕЖИМА ХИМИЧЕСКОЙ РЕАКЦИИ НА ОСНОВЕ ГЕНЕТИЧЕСКОГО АЛГОРИТМА

Е.В. Антипина¹, С.А. Мустафина², А.Ф. Антипин³

Стерлитамакский филиал Башкирского государственного университета

¹Научно-инновационное управление

²Кафедра математического моделирования

³Кафедра прикладной информатики и программирования

Статья посвящена созданию алгоритма поиска оптимального температурного режима химической реакции на основе эволюционных вычислений. Сформулирована в общем виде задача оптимального управления химическим процессом, описан генетический алгоритм для решения поставленной задачи. Проведен вычислительный эксперимент для реакции аминометилирования тиолов с помощью тетраметилметандиамина с целью получения максимального выхода продукта реакции. Получен оптимальный температурный профиль и оптимальные концентрации реагентов. Результаты вычислительного эксперимента удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными.

Ключевые слова: оптимальное управление, генетический алгоритм, реакция аминометилирования тиолов.

DOI 10.26456/vtchem2019.3.2

Одной из важнейших задач математического моделирования химико-технологических процессов является задача определения оптимальных условий ведения процессов и оптимальных конструкций аппаратов. Применение методов математического моделирования дает возможность повысить производительность технологической схемы процесса и получить конкретные количественные результаты, имитируя натуральный и лабораторный эксперименты с помощью компьютерных программ [1].

Поскольку поиск оптимальных условий ведения процесса опирается на кинетическую модель реакции, то такая задача имеет следующие особенности:

1) Нелинейность, связанная с тем, что правая часть дифференциальных уравнений, представляющих собой кинетическую модель реакции, является показательной функцией от управления, а также нелинейной функцией фазовых переменных.

2) Наличие ограничений на управление и/или фазовые переменные.

3) Большая размерность решаемой задачи, связанная со сложностью процессов.

В связи с перечисленными особенностями возникает ограничение применимости некоторых методов оптимизации. Нелинейность не позволяет применять методы линейного программирования [2]. Вторая особенность ограничивает использование методов вариационного исчисления [3]. Большая размерность задач затрудняет использовать динамическое программирование ввиду больших вычислительных затрат [4]. Для применения принципа максимума необходима дополнительная проверка найденного решения на оптимальность [5, 6, 7].

Одним из способов преодоления данных трудностей в процессе поиска оптимального управления химико-технологическим процессом является применение генетических алгоритмов. Генетические алгоритмы имитируют процессы, происходящие в ходе эволюции (наследственность, изменчивость, естественный отбор), в результате чего выживают наиболее приспособленные особи, которые порождают новое поколение потомков [8, 9]. Генетические алгоритмы позволяют найти решение оптимизационной задачи за приемлемое время, не отталкиваясь от начальной точки поиска решения. При этом сами алгоритмы можно легко модифицировать с увеличением вектора фазовых переменных, что позволяет применять алгоритм решения оптимизационной задачи для различных процессов, кинетические модели которых содержат разное количество реагирующих веществ.

Постановка задачи

Сформулируем в общем виде задачу поиска оптимального управления и ее основные части:

1) математическая модель процесса, в которую включены параметры управления, области допустимых решений, начальные значения переменных модели;

2) ограничения, накладываемые на управляющие параметры и/или фазовые переменные;

3) критерий оптимизации, выражающий количественную характеристику решения оптимизационной задачи.

Пусть модель управляемого процесса представляет собой систему обыкновенных дифференциальных уравнений [10]:

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

где $x = (x_1, x_2, \dots, x_n)^T$ – вектор фазовых переменных, t – время, $u = (u_1, u_2, \dots, u_n)^T \in U$ – вектор управления, U – множество допустимых

значений управления, $f_i(t, x, u)$ – функции, непрерывные вместе со своими частными производными ($i = \overline{1, n}$).

Пусть заданы начальные значения фазовых переменных:

$$x_i(0) = x_{i0}, i = \overline{1, n}. \quad (2)$$

Под множеством допустимых процессов $Q(t_0, x_0)$ понимается множество пар $q = (x(t), u(t))$, которые удовлетворяют системе (1) и начальному условию (2).

Пусть критерий оптимальности задается в виде некоторого функционала на множестве допустимых решений:

$$G(q) = F(x(t_{end})), \quad (3)$$

где t_{end} – конечное время функционирования системы.

Необходимо найти такую пару $q^* = (x^*(t), u^*(t)) \in Q(t_0, x_0)$, что $G(q^*) = \max_{q \in Q(t_0, x_0)} G(q)$.

В качестве фазовых переменных x_i ($i = \overline{1, n}$) будем рассматривать значения концентраций взаимодействующих веществ. Тогда система дифференциальных уравнений (1) с начальными условиями (2) представляет собой кинетическую модель химической реакции.

Одним из параметров, наиболее сильно влияющих на динамику химических процессов, является температура. Поэтому одной из задач оптимизации химических процессов является определение оптимального температурного режима $T = T(t)$, обеспечивающего экстремум критерия оптимальности (3). При этом на параметр управления могут быть наложены ограничения в виде:

$$T_* \leq T(t) \leq T^*, \quad (4)$$

где T_* и T^* – нижняя и верхняя границы допустимого температурного диапазона.

Генетический алгоритм для поиска оптимального управления химическим процессом

Сформулируем алгоритм поиска оптимального температурного режима химического процесса на основе генетического алгоритма. В качестве параметра управления в генетическом алгоритме возьмем температуру реакции $T(t)$.

Работа генетического алгоритма заключается в последовательной смене набора векторов, называемого популяцией. Каждый вектор представляет собой аналог особи (хромосомы) в популяции и состоит из набора числовых значений, которые называются генами, или признаками [11]. Из популяции по определенному правилу выбираются две особи (оператором селекции), которые скрещиваются между собой,

т.е. генерируется новый вектор-особь, которая в дальнейшем подвергается действию оператора мутации, в результате чего изменяются один или несколько генов (значений координат вектора). В новое поколение переходят самые приспособленные особи из текущей популяции. Приспособленность особи определяется посредством вычисления функции приспособленности, в качестве которой выступает критерий оптимальности. Данная процедура смены поколений популяции продолжается до тех пор, пока не будет достигнут критерий окончания поиска, например, заданное количество смены поколений.

Рассмотрим в качестве популяции температуру $T(t)$, которую представим набором из m векторов $T_i = (T_{i1}, T_{i2}, \dots, T_{ik-1})$ ($i = \overline{1, m}$). Для вычисления функции приспособленности (3) необходимо вычислить вектор концентраций $x_i(t_{end}) = (x_{i1}(t_{end}), x_{i2}(t_{end}), \dots, x_{in}(t_{end}))$, соответствующий вектору управлению T_i , решив для этого систему дифференциальных уравнений (1) с начальными условиями (2).

Сформулируем данный алгоритм.

Шаг 1. Генерирование начальной популяции векторов температуры.

Задать размер популяции m , номер текущей популяции $P = 0$, максимальное количество популяций P_{max} , число точек разбиения k интервала времени $[0, t_{end}]$. На интервале $[T_*, T^*]$ случайным образом сгенерировать начальную популяцию $T^0 = (T_1^0, T_2^0, \dots, T_m^0)$, где $T_i^0 = (T_{i1}^0, T_{i2}^0, \dots, T_{ik-1}^0)$ ($i = \overline{1, m}$).

Для каждого вектора T_i^0 решить прямую кинетическую задачу, то есть систему дифференциальных уравнений (1) с начальными условиями (2). На основе полученных значений концентраций для каждой особи T_i^P рассчитать значение функции приспособленности (3).

Шаг 2. Селекция.

Оператор селекции осуществляет отбор особей для последующего скрещивания. Оператор селекции «рулетка» позволяет отобрать особи с наилучшим значением функции приспособленности. Для каждой особи вычисляется вероятность отбора по формуле

$$p(T_i^P) = \frac{G(x, T_i^P)}{\sum_{j=1}^m G(x, T_j^P)}.$$

Выбираются две особи с наибольшими значениями вероятностей $a = T_l^P$ и $b = T_r^P$, где l и r – номера особей с наибольшими значениями вероятностей отбора.

Шаг 3. Скрещивание (кроссовер).

Оператор скрещивания генерирует две новые особи-потомка $c = (c_1, c_2, \dots, c_{n-1})$ и $d = (d_1, d_2, \dots, d_{n-1})$ из родительских особей $a = (a_1, a_2, \dots, a_{n-1})$, $b = (b_1, b_2, \dots, b_{n-1})$, выбранных на предыдущем шаге, путем обмена части генов:

$$c_i = \lambda a_i + (1 - \lambda) b_i, \quad d_i = \lambda b_i + (1 - \lambda) a_i,$$

где λ – случайное число из диапазона $(0,1)$.

Шаг 4. Мутация.

Оператор мутации предназначен для преодоления попадания популяции в локальный экстремум. На данном шаге преобразуются гены потомков c и d . Для этого случайным образом выбирается ген потомка и заменяется случайным значением из диапазона допустимых значений $[T_*, T^*]$. Для измененных векторов c , d требуется рассчитать значение функции приспособленности путем решения прямой кинетической задачи.

Шаг 5. Обновление популяции.

Из текущей популяции векторов температур $T^P = (T_1^P, T_2^P, \dots, T_m^P)$ выбирается особь T_i^P , которой соответствует наихудшее значение функции приспособленности (для задачи на максимум наихудшим является наименьшее значение функции приспособленности (3), для задачи на минимум – наибольшее значение функции приспособленности). Данный вектор T_i^P заменяется одним случайно выбранным потомком c или d .

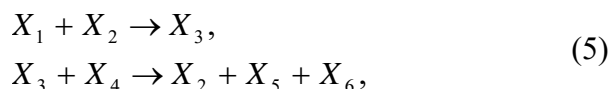
Шаг 6. Проверка условия окончания поиска решения.

Если $P \leq P_{\max}$, то перейти на шаг 2, иначе остановить поиск. Выбрать из последней популяции $T^{P_{\max}} = (T_1^{P_{\max}}, T_2^{P_{\max}}, \dots, T_m^{P_{\max}})$ особь с наилучшим значением функции приспособленности (наибольшим – для задачи на максимум, наименьшим – для задачи на минимум). Выбранный вектор $T_i^{P_{\max}}$ будет представлять собой оптимальный температурный профиль $T(t)$ химического процесса, описываемого кинетической моделью (1).

Вычислительный эксперимент

На основе построенного алгоритма решим задачу поиска оптимального температурного режима для реакции аминотетраметилирования тиолов с использованием тетраметилметандиамина. Азот- и серосодержащие органические соединения широко применяются как эффективные средства защиты растений, антиокислительные, противокоррозионные, противоизносные присадки к топливам и маслам. В Институте нефтехимии и катализа РАН (г. Уфа) в лаборатории гетероатомных

соединений проведены экспериментальные исследования реакции аминотетелирования тиолов с помощью тетраметилметандиамина. Схема данной реакции представляется последовательностью стадий [12]:



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 согласно закону действующих масс имеют вид:

$$\begin{aligned} \omega_1 &= k_1 x_1 x_2, \\ \omega_2 &= k_2 x_3 x_4, \end{aligned} \quad (6)$$

где $x = (x_1, x_2, \dots, x_6)^T$ – вектор концентраций веществ (моль/л), $k = (k_1, k_2)$ – вектор кинетических констант реакции (л/(моль·ч)), которая рассчитывается исходя из уравнения 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), T – температура протекания реакции (К), R – универсальная газовая постоянная (Дж/(моль·К)).

Кинетическая модель реакции аминотетелирования тиолов с помощью тетраметилметандиамина представляет собой систему дифференциальных уравнений:

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{dx_1}{dt} &= -\omega_1, \\ \frac{dx_2}{dt} &= -\omega_1 + \omega_2, \\ \frac{dx_3}{dt} &= \omega_1 - \omega_2, \\ \frac{dx_4}{dt} &= -\omega_2, \\ \frac{dx_5}{dt} &= \omega_2, \\ \frac{dx_6}{dt} &= \omega_2. \end{aligned} \right. \quad (7)$$

с начальными условиями

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

Пусть управляющим параметром является температура в реакторе. Необходимо найти оптимальный температурный режим

$T = T(t)$ химического процесса (5), представляемого системой дифференциальных уравнений (7) с начальными условиями (8) с целью обеспечения максимального выхода целевого продукта реакции

$$G(x, T) = x_5(t_{end}) \rightarrow \max. \quad (9)$$

Допустимые значения температуры задаются неравенством:

$$293 \text{ K} \leq T(t) \leq 333 \text{ K}. \quad (10)$$

Сформулированная задача (5)-(10) решена с помощью разработанного генетического алгоритма со следующими параметрами: размер популяции – 60, максимальное количество популяций – 5000, количество точек разбиения временного интервала – 450. Время протекания реакции – 1 ч. Для решения системы дифференциальных уравнений (7) применен метод Рунге-Кутты четвертого порядка.

Численные значения кинетических параметров рассматриваемой реакции приведены в таблице 1 [13].

Таблица 1

Кинетические параметры реакции аминотетирования тиолов при $T=293 \text{ K}$

j	$k_j, \text{ л}/(\text{моль} \cdot \text{ч})$	$E_j, \text{ Дж}/\text{моль}$
1	8.77	68617.6
2	10.6	34727.2

Начальные концентрации веществ (8) заданы следующими значениями (моль/л) [13]:

$$x_1(0) = 0.445,$$

$$x_2(0) = 0.223,$$

$$x_3(0) = 0,$$

$$x_4(0) = 0.367,$$

$$x_5(0) = x_6(0) = 0.$$

Результаты и обсуждение

В результате вычислительного эксперимента для реакции аминотетирования тиолов с помощью тетраметилметандиамина рассчитан оптимальный температурный профиль и оптимальные концентрации веществ (рис. 1).

В результате расчета оптимального температурного режима реакции (5) установлено, что для обеспечения максимального выхода продукта реакции необходимо удерживать максимально допустимую температуру 333 K в течение всего времени протекания реакции (1 ч.), а максимальный выход целевого продукта X_5 составляет 86%. Полученный результат решения задачи оптимального управления на основе генетического алгоритма для схемы реакции (5) согласуется с

тем, что для положительных значений энергий активации выход продукта всегда будет максимальным при максимальной температуре.

Ранее экспериментальным способом получено, что оптимальным условием протекания реакции (5) является температура 333 К [12, 13]. Поскольку экспериментальные исследования согласуются с результатами вычислительного эксперимента для реакции аминометилирования тиолов с помощью тетраметилметандиамина, можно сделать вывод о корректной работе разработанного генетического алгоритма.

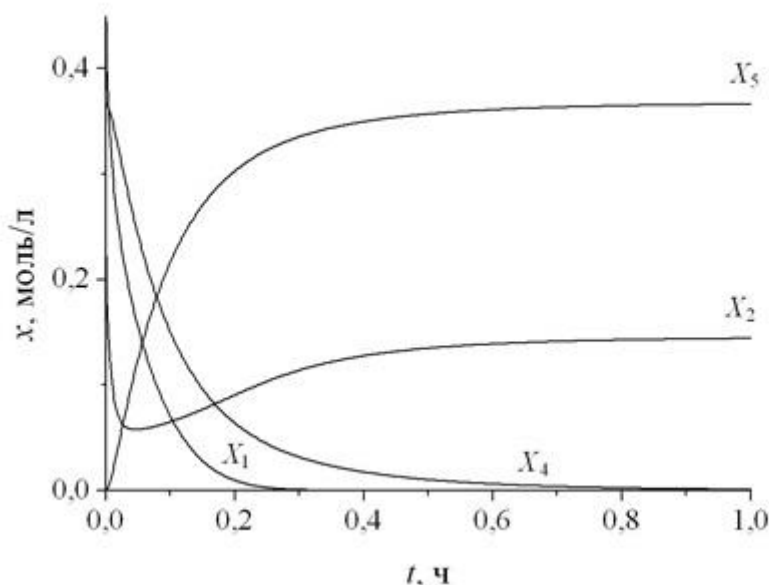


Рис. 1. Изменение концентраций исходных веществ (X_1 , X_2 , X_4) и целевого вещества (X_5) при оптимальной температуре

Таким образом, построенный генетический алгоритм поиска оптимального температурного режима можно применять для решения задач оптимизации химических процессов. Данный алгоритм носит универсальный характер, поскольку его легко модифицировать не только при замене механизма химической реакции, но и для решения других задач оптимального управления химико-технологических процессов.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ и Правительства Республики Башкортостан в рамках научного проекта № 17-47-020068.

Список литературы

1. Степашина Е.В., Мустафина С.А. // Журнал Средневолжского математического общества. 2011. Т. 13. № 3. С. 118–121.

2. Емельянов И.И., Зиятдинов Н.Н., Островский Г.М. // Вестник технологического университета. 2016. Т. 19. № 17. С. 132–137.
3. Холоднов В.А., Дьяконов В.П., Иванова Е.Н., Кирьянова Л.С. Математическое моделирование и оптимизация химико-технологических процессов: Практическое руководство. СПб.: АНО НПО «Профессионал», 2003. 480 с.
4. Бояринов А.И., Кафаров В.В. Методы оптимизации в химической технологии. М.: Химия, 1975. 576 с.
5. Байтимерова А.И., Мустафина С.А., Спивак С.И. // Башкирский химический журнал. 2008. Т. 15. № 2. С. 86–88.
6. Дикусар Э.В. Задачи оптимального управления в химической кинетике: дисс. ... канд. физ.-мат. наук. М., 2005. 122 с.
7. Biegler L.T. // Theor. Found. Chem. Eng. 2017. V. 51. No. 6. P. 910–927.
8. Mustafina S.A., Vaytiev V.A. // ARPN Journal of Engineering and Applied Sciences. 2014. Vol. 9. No 7. P. 1118–1120.
9. Антипин А.Ф. // Автоматизация, телемеханизация и связь в нефтяной промышленности. 2014. № 7. С. 26–30.
10. Пантелеев А.В., Летова Т.А. Методы оптимизации в примерах и задачах. М.: Высшая школа, 2005. 544 с.
11. Пантелеев А.В., Метлицкая Д.В. // Научный вестник МГТУ ГА. 2010. № 157 (7). С. 34–41.
12. Хайруллина Р.Р., Акманов Б.Ф., Тюмкина Т.В., Кунакова Р.В., Ибрагимов А.Г. // Журнал органической химии. 2012. Т. 48. Вып. 2. С. 189–193.
13. 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.

SEARCH FOR OPTIMAL TEMPERATURE MODE OF CHEMICAL REACTION BASED ON GENETIC ALGORITHM

E.V. Antipina¹, S.A. Mustafina², A.F. Antipin³

Sterlitamak Branch of Bashkir State University

¹*Scientific and Innovative Management*

²*Department of Mathematical Modeling*

³*Department of Applied Informatics and Programming*

The article is devoted to the creation of an algorithm for finding the optimal temperature mode of a chemical reaction based on evolutionary calculations. The problem of optimal control of the chemical process is formulated in general form, a genetic algorithm for solving the problem is described. A computational experiment was carried out for the reaction of aminomethylation of thiols with tetramethyl methane diamine to obtain the maximum yield of the reaction product. An optimal temperature profile and optimal concentrations of reagents were obtained. The results of the

computational experiment are in satisfactory agreement with the experimental data.

Keywords: *optimal control, genetic algorithm, thiol aminomethylation reaction.*

Об авторах:

АНТИПИНА Евгения Викторовна – кандидат физико-математических наук, младший научный сотрудник научно-инновационного управления Стерлитамакского филиала Башкирского государственного университета, e-mail: stepashinaev@ya.ru

МУСТАФИНА Светлана Анатольевна – доктор физико-математических наук, профессор, зав. кафедрой математического моделирования Стерлитамакского филиала Башкирского государственного университета, e-mail: mustafina_sa@mail.ru

АНТИПИН Андрей Федорович – кандидат технических наук, доцент, доцент кафедры прикладной информатики и программирования Стерлитамакского филиала Башкирского государственного университета, e-mail: andrejantipin@ya.ru

Поступила в редакцию 15 июля 2019г.