

АЛГОРИТМ ПОИСКА ОПТИМАЛЬНЫХ НАЧАЛЬНЫХ КОНЦЕНТРАЦИЙ ВЕЩЕСТВ КАТАЛИТИЧЕСКОЙ РЕАКЦИИ НА ОСНОВЕ ЭВОЛЮЦИОННЫХ ВЫЧИСЛЕНИЙ

Е.В. Антипина¹
С.А. Мустафина¹
А.Ф. Антипин²

stepashinaev@ya.ru
mustafina_sa@mail.ru
andrejantipin@ya.ru

¹ УУНиТ, Уфа, Российская Федерация

² Стерлитамакский филиал УУНиТ, Стерлитамак, Российская Федерация

Аннотация

Предложен численный алгоритм определения оптимальных начальных концентраций веществ каталитической реакции. В общем виде приведена постановка задачи поиска оптимальных реагентов на основе математического описания реакции. Для решения поставленной задачи сформулирован алгоритм, в основу которого положен метод дифференциальной эволюции. Преимущество метода — отсутствие чувствительности решения задач к выбору начальной точки, с которой начинается итеративная процедура поиска решения. В алгоритм дифференциальной эволюции внесены модификации с учетом физико-химических ограничений задачи. С использованием программы, реализующей созданный алгоритм, проведен вычислительный эксперимент для каталитической реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида. Приведена кинетическая модель реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида, на основе которой сформулирована задача определения оптимальных концентраций реагентов. В качестве критерия оптимальности рассмотрено максимальное значение концентрации целевого продукта в конечный момент времени протекания реакции. Определен вектор начальных концентраций реагентов, при котором достигается наибольшее значение концентрации продукта реакции. Показано незначительное отклонение решения задачи поиска оптимальных начальных концентраций веществ,

Ключевые слова

Оптимальные начальные концентрации, дифференциальная эволюция, кинетическая модель реакции, эволюционные вычисления, каталитическая реакция

полученного с использованием разработанного алгоритма, от решения, которое найдено методами штрафов и Хука — Дживса

Поступила 07.04.2023

Принята 13.06.2023

© Автор(ы), 2024

Работа выполнена в рамках государственного задания Минобрнауки России (код научной темы FZWU-2023-0002)

Введение. Применение математических методов при моделировании процессов и производств химической промышленности позволяет находить решения для многих практических задач, одной из которых является определение оптимальных условий их проведения. Алгоритм управления химико-технологическим процессом может быть основан на его математической модели, построение которой опирается на результаты экспериментальных исследований. Однако при решении различных производственных задач не всегда есть возможность провести достаточно экспериментов ввиду сложного состава исходного сырья, невысокого содержания в нем ценных компонентов, дорогостоящих реагентов и оборудования. Поэтому разработка математических методов, имитирующих натуральный химический эксперимент и позволяющих исследовать закономерности протекания каталитических процессов, представляет собой актуальную научную задачу.

Одна из практически значимых задач химической технологии — задача прогнозирования количественных или качественных показателей протекания процесса в зависимости от начальных условий. При проведении химического эксперимента исследователю требуется определить, в каком соотношении взять реагенты, чтобы получить наибольший выход продукта реакции, наименьший выход побочных продуктов, обеспечить минимальные затраты на реагенты и т. п. Определить значения концентраций веществ в каждый момент времени при произвольном наборе начальных концентраций можно на основе кинетической модели реакции, которая представляет собой нелинейную систему дифференциальных уравнений.

Задача определения набора начальных концентраций реагентов, обеспечивающих выполнение заданного количественного или качественного показателя, представляет собой оптимизационную задачу. Решению задач оптимизации и оптимального управления в химии и химической технологии посвящено несколько работ, основанных на применении принципа максимума Понтрягина, линейного программирования, динамического программирования, вариационных методов [1–3]. Однако ввиду особенностей моделей каталитических процессов, таких как нелинейность, большая размерность, фазовые ограничения, возникают трудности вычислительного характера при численной реализации алгоритмов, основанных

на классических оптимизационных методах. Так, динамическое программирование эффективно используется для решения задач многостадийных процессов, в которых на каждой стадии имеется небольшое число переменных. При увеличении числа переменных, описывающих процесс каждой стадии, возникают вычислительные трудности, связанные с увеличением времени решения задачи. Еще одна особенность большинства численных методов решения оптимизационных задач — чувствительность найденного решения к начальному приближению, что в свою очередь требует от исследователя знания некоторого приближения этой начальной точки из физико-химических соображений поставленной задачи.

Перечисленные трудности можно преодолеть за счет применения методов эволюционного поиска, которые в последнее время положительно зарекомендовали себя при решении широкого класса оптимизационных задач [4–7]. Эти методы основаны на принципах эволюции живой природы, при которых выживают и переходят в следующее поколение наиболее приспособленные особи, подвергающиеся отбору, мутации и скрещиванию (кроссоверу). К методам эволюционного поиска относится метод дифференциальной эволюции [8–10]. Это метод многомерной оптимизации, позволяющий определять глобальный экстремум нелинейных, недифференцируемых и мультимодальных функций без вычисления производных целевой функции. Преимущество метода — отсутствие чувствительности решения задач к начальному приближению. В отличие от других методов эволюционного поиска метод дифференциальной эволюции включает в себя небольшое число параметров, которые необходимо подбирать для каждой решаемой задачи, что облегчает его программную реализацию и применение для решения практических задач.

Меньшая ресурсозатратность метода дифференциальной эволюции по сравнению с другими оптимизационными методами неоднократно обсуждалась во многих работах, например, [11–14]. Так, в [11] приведено сравнение метода дифференциальной эволюции с другими методами (генетический алгоритм, адаптивный метод имитации отжига, алгоритм Нелдера — Мида и др.) при решении задачи минимизации целевой функции. Для большинства рассматриваемых задач метод дифференциальной эволюции показал лучшие результаты по сравнению с другими численными методами с позиции наименьшего необходимого числа обращений к целевой функции. Преимущество метода дифференциальной эволюции по сравнению с другими стохастическими методами оптимизации (метод роя частиц, метод имитации отжига) в плане минимального времени решения задач продемонстрировано в [12].

Цель работы — разработка численного алгоритма поиска оптимальных начальных концентраций каталитической реакции на основе метода дифференциальной эволюции.

Материалы и методы решения задач, принятые допущения. Рассмотрим каталитическую реакцию из m стадий, в которой участвуют вещества X_j ($j = \overline{1, n}$):



где α_{ij} , β_{ij} — стехиометрические коэффициенты ($i = \overline{1, m}$).

Пусть изменение концентраций веществ X_j сложной каталитической реакции во времени представляет собой систему дифференциальных уравнений:

$$\frac{dx}{dt} = f(t, x(t), T) \quad (2)$$

с начальными условиями

$$x_j(0) = x_j^0, \quad j = \overline{1, n}, \quad (3)$$

где $x(t) = (x_1(t), x_2(t), \dots, x_n(t))^T$ — вектор концентраций веществ; $t \in [0, \bar{t}]$ — время; T — температура; $f(t, x(t), T) = (f_1(t, x(t), T), f_2(t, x(t), T), \dots, f_n(t, x(t), T))^T$ — непрерывная вместе с частными производными вектор-функция.

Обозначим начальную суммарную концентрацию веществ как C_0 . Тогда в начальный момент времени концентрации веществ связаны соотношением

$$C_0 = \sum_{j=1}^n x_j(0). \quad (4)$$

Пусть на значения начальных концентраций наложены ограничения вида

$$0 \leq x_j(0) \leq x_b(0), \quad j = \overline{1, n}. \quad (5)$$

В качестве критерия оптимальности примем функцию

$$F(x(0)) = \sum_{j=1}^n \mu_j x_j(\bar{t}) \rightarrow \max, \quad (6)$$

выражающую максимальный выход целевых продуктов реакции ($\mu_j > 0$) либо минимальный выход побочных продуктов реакции ($\mu_j < 0$) в момент времени $t = \bar{t}$.

Задача оптимизации начальных концентраций каталитической реакции (1) состоит в поиске вектора $x^*(0) = (x_1^*(0), x_2^*(0), \dots, x_n^*(0))$, при котором критерий оптимальности (6) достигает максимального значения и выполнены ограничения (4), (5).

Для решения задачи применим метод дифференциальной эволюции. В качестве набора возможных решений введем в рассмотрение популяцию из m векторов:

$$x_i(0) = (x_{i1}(0), x_{i2}(0), \dots, x_{in}(0)), \quad i = \overline{1, m}. \quad (7)$$

Функцией приспособленности каждой особи является критерий оптимальности (6). Поскольку решается задача на максимум, наиболее приспособленной особи соответствует наибольшее значение функции приспособленности. Чтобы вычислить значение функции приспособленности, необходимо найти численное решение системы дифференциальных уравнений (2) с начальными условиями (3).

Метод дифференциальной эволюции заключается в смене поколений популяции векторов (7) путем применения операторов отбора, мутации, скрещивания и постепенном приближении к решению оптимизационной задачи [15–18]. При формировании нового поколения последовательно исследуется каждая особь текущей популяции (вектор-мишень) и принимается решение о ее переходе в новую популяцию в зависимости от значения функции приспособленности.

Задача оптимизации (1)–(6) имеет несколько особенностей, связанных с ее физико-химическим смыслом. Во-первых, на этапе заполнения начальной популяции случайными значениями из области, задаваемой неравенством (5), необходимо предусмотреть, чтобы сумма компонентов вектора $x_i(0)$ не превышала суммарную концентрацию C_0 . Во-вторых, на этапе мутации при формировании вектора-мутанта необходимо контролировать нарушение границ области допустимых значений (условие (5)), так как значение концентрации вещества не может быть отрицательным. На этапе скрещивания необходимо учитывать ограничение (4), так как в большинстве случаев оно может нарушиться. Поэтому в алгоритм метода дифференциальной эволюции необходимо внести корректировку значений компонентов векторов (7) с учетом ограничений (4), (5).

Результаты. Сформулируем численный алгоритм поиска оптимальных начальных концентраций веществ на основе метода дифференциальной эволюции.

1. Случайным образом сгенерировать начальную популяцию (7) с учетом ограничений (4), (5). Задать параметр оператора кроссовера $par_cross \in [0, 1]$, параметр оператора мутации $par_mut \in [0, 5; 1]$ [11], максимальное число поколений p_{max} . Установить счетчик поколений $p := 1$.

2. В качестве вектора-мишени $x_{vm}(0)$ задать первую особь популяции: $vm := 1$.

3. Для каждого вектора $x_i(0)$ ($i = \overline{1, m}$) вычислить значение функции приспособленности путем решения системы дифференциальных уравнений (2) с начальными условиями (3).

4. Из текущей популяции случайным образом выбрать два вектора с номерами r_1, r_2 , не совпадающими с вектором-мишенью. Сформировать новый вектор-мутант $x_{mut}(0)$ из вектора с наибольшим значением функции приспособленности $x_{max}(0)$ ($max \neq vm$) и векторов $x_{r_1}(0)$, $x_{r_2}(0)$, применяя оператор мутации. Координаты вектора-мутанта $x_{mut}(0)$ рассчитываются по формуле:

$$x_{mut\ j}(0) = x_{max\ j}(0) + par_mut(x_{r_1\ j}(0) - x_{r_2\ j}(0)), \quad j = \overline{1, n}.$$

Поскольку значение концентрации вещества не может быть отрицательным и превышать установленное $x_b(0)$, необходимо проверить условие: если $x_{mut\ j}(0) > x_{max\ j}(0)$ или $x_{mut\ j}(0) < 0$, $j = \overline{1, n}$, то

$$x_{mut\ j}(0) := s,$$

где s — случайное значение из области, задаваемой неравенством (5).

5. Сформировать пробный вектор начальных концентраций веществ $x_{pr}(0)$ с помощью оператора кроссовера. Для каждой координаты нового пробного вектора сгенерировать случайное число $q_j \in [0, 1]$ ($j = \overline{1, n}$). Если $q_j \leq par_cross$, то j -й координате пробного вектора $x_{pr\ j}(0)$ присвоить значение j -й координаты вектора-мутанта $x_{mut}(0)$, иначе j -й координате пробного вектора присвоить соответствующее значение j -й координаты вектора-мишени $x_{vm}(0)$.

В результате получаем пробный вектор $x_{pr}(0)$, сумма значений компонентов которого может отличаться от заданной начальной суммарной

концентрации веществ C_0 . В этом случае необходимо преобразовать координаты вектора $x_{pr}(0)$:

$$x_{prj}(0) := \frac{x_{prj}(0)}{\sum_{l=1}^n x_{prl}(0)} C_0.$$

6. Вычислить значение функции приспособленности для пробного вектора $x_{pr}(0)$.

7. Если $F(x_{pr}(0)) > F(x_{vm}(0))$, то в новую популяцию поместить пробный вектор $x_{pr}(0)$, в противном случае — вектор-мишень $x_{vm}(0)$.

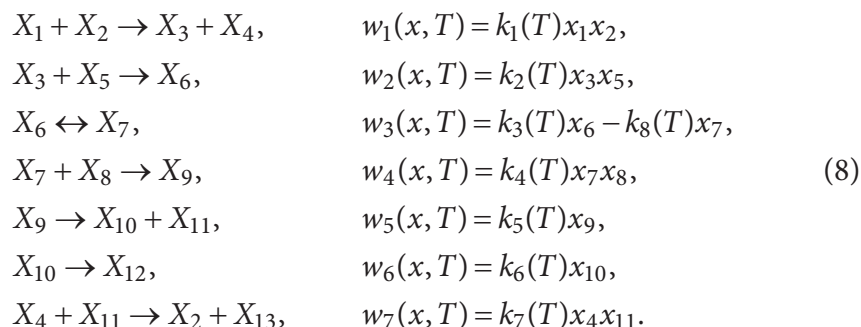
8. Перейти к следующей итерации поиска. Если $vm < m$, то увеличить vm на 1 и перейти к шагу 4, иначе — к шагу 9.

9. Если $p < p_{\max}$, то $p := p + 1$ и перейти к шагу 2, иначе остановить поиск решения. Выбрать из последней популяции особь $x^*(0)$ с наибольшим значением функции приспособленности. Выбранный вектор $x^*(0)$ является приближенным решением задачи поиска оптимальных начальных концентраций веществ каталитической реакции.

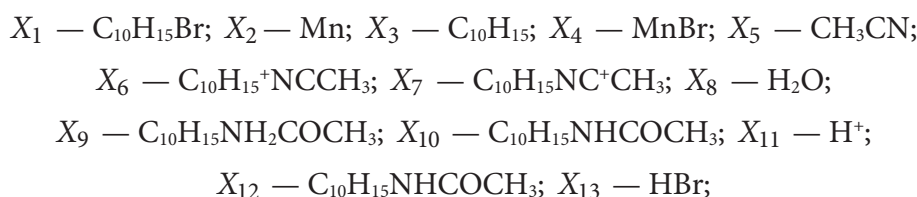
Задача определения оптимальных начальных концентраций веществ — задача поиска условного экстремума, так как необходимо учитывать ограничения (4), (5). Для ее решения можно использовать метод штрафов, который позволяет перейти к задаче без ограничений и решать новую задачу методом безусловной оптимизации. Однако большинство классических численных методов безусловной оптимизации зависит от выбора начальной точки поиска решения. Поэтому в ходе поиска решения какой-либо прикладной задачи исследователю требуется задать его начальное приближение исходя из смысла поставленной задачи. Сформулированный здесь алгоритм позволяет преодолеть указанную трудность. Поскольку в его основу положен метод дифференциальной эволюции, в процессе вычислений оптимизируется набор возможных решений, генерируемых случайно на шаге 1 алгоритма. При применении разработанного алгоритма не требуется задавать начальное приближение решения задачи.

Используя сформулированный алгоритм, вычислим оптимальные начальные концентрации реагентов для реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида под действием комплексов марганца.

Схема реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида взаимодействием 1-бромадамантила с ацетонитрилом под действием комплексов марганца и соответствующие уравнения скоростей стадий имеют вид [19]:



Здесь



$x = (x_1, x_2, \dots, x_{13})^T$ — вектор концентраций веществ реакции, $k(T) = (k_1(T), k_2(T), \dots, k_8(T))$ — вектор констант скоростей стадий, рассчитываемых по уравнению Аррениуса.

Динамика концентраций веществ реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида описывается системой дифференциальных уравнений

$$\begin{array}{ll}
 \frac{dx_1}{dt} = -w_1, & \frac{dx_8}{dt} = -w_4, \\
 \frac{dx_2}{dt} = -w_1 + w_7, & \frac{dx_9}{dt} = w_4 - w_5, \\
 \frac{dx_3}{dt} = w_1 - w_2, & \frac{dx_{10}}{dt} = w_5 - w_6, \\
 \frac{dx_4}{dt} = w_1 - w_7, & \frac{dx_{11}}{dt} = w_5 - w_7, \\
 \frac{dx_5}{dt} = -w_2, & \frac{dx_{12}}{dt} = w_6, \\
 \frac{dx_6}{dt} = w_2 - w_3, & \frac{dx_{13}}{dt} = w_7, \\
 \frac{dx_7}{dt} = w_3 - w_4, &
 \end{array} \tag{9}$$

с начальными условиями

$$\begin{array}{l}
 x_1(0) = x_1^0, x_2(0) = x_2^0, x_5(0) = x_5^0, x_8(0) = x_8^0, x_i(0) = x_i^0, \\
 i = 3, 4, 6, 7, 9, 10, 11, 12, 13.
 \end{array} \tag{10}$$

Значения констант скоростей k_i и энергий активации E_i ($i = \overline{1, 8}$) стадий реакции приведены в табл. 1 [20].

Таблица 1

**Кинетические параметры реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида
($T = 130\text{ }^\circ\text{C}$)**

i	k_i , 1/ч для $i = 3, 5, 6, 8$ или л/(моль · ч) для $i = 1, 2, 4, 7$	E_i , кДж/моль
1	0,486	44,97
2	12,86	6,99
3	29,8	8,79
4	68,61	35,92
5	35,2	12,14
6	159	35,88
7	2,37	38,52
8	1,9	8,12

Исходными веществами реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида являются X_1, X_2, X_5, X_8 . Пусть концентрации указанных веществ в начальный момент времени связаны соотношением

$$x_1(0) + x_2(0) + x_5(0) + x_8(0) = C_0, \quad (11)$$

а начальная суммарная концентрация веществ $C_0 = 13,38$ моль/л [19].

Зададим область допустимых значений начальных концентраций веществ в виде неравенств:

$$0 < x_i(0) < C_0, \quad i = 1, 2, 5, 8. \quad (12)$$

Начальные концентрации остальных веществ равны нулю.

Целевым продуктом реакции (8) является вещество X_{12} . Для реакции (8) требуется определить вектор начальных концентраций $x^*(0) = (x_1^*(0), x_2^*(0), x_5^*(0), x_8^*(0))$ исходных веществ X_1, X_2, X_5, X_8 , удовлетворяющий условиям (11), (12) и доставляющий максимум критерию оптимальности:

$$F(x(0)) = x_{12}(\bar{t}) \rightarrow \max. \quad (13)$$

Критерий (13) выражает максимальное значение концентрации целевого продукта реакции X_{12} в конечный момент времени \bar{t} .

Численное решение сформулированной задачи (8)–(13) получено на основе метода дифференциальной эволюции с использованием про-

граммы, реализованной на языке программирования *Delphi*. Решение вычислено для реакции продолжительностью $\bar{t} = 2$ ч при температуре $T = 130$ °С. Для решения системы дифференциальных уравнений (9) с начальными условиями (10) применен предиктор-корректорный метод Адамса второго порядка.

В процессе решения оптимизационной задачи проведена серия вычислительных экспериментов с различными наборами параметров алгоритма метода дифференциальной эволюции (табл. 2). Проведено 20 запусков программы для каждого набора, удачными из которых считались те, при которых критерий оптимальности принимал максимальное значение. При увеличении параметров мутации и скрещивания для получения стабильного решения необходимо увеличить размер популяции m от 40 до 60 (строки №№ 10–12, 18), что приводит к возрастанию времени решения задачи. Поэтому для решения задачи (8)–(13) приняты следующие параметры алгоритма: размер популяции $m = 30$, параметр мутации $par_mut = 0,5$, параметр кроссовера $par_cross = 0,1$. Результаты вычислений показали, что независимо от набора параметров наилучшее значение функции приспособленности стабилизируется к концу поиска решения при максимальном числе поколений $p_{max} = 30$. Время решения задачи при указанном наборе параметров алгоритма 12 с.

Таблица 2

**Зависимость критерия оптимальности от параметров алгоритма
метода дифференциальной эволюции**

Номер	Параметр		Размер популяции m	Время решения задачи, с	Число удачных запусков	$F_{max}(x(0))$
	Мутации par_mut	Кроссовера par_cross				
1	0,5	0,1	10	4	0	2,650–3,100
2			20	8	19	3,107–3,109
3			30	12	20	3,109
4			40	16		
5			50	20		
6			60	24		
7	0,7	0,5	10	4	0	2,258–3,015
8			20	8	1	2,943–3,109
9			30	12	19	3,108–3,109
10			40	16	20	3,109
11			50	20		
12			60	24		

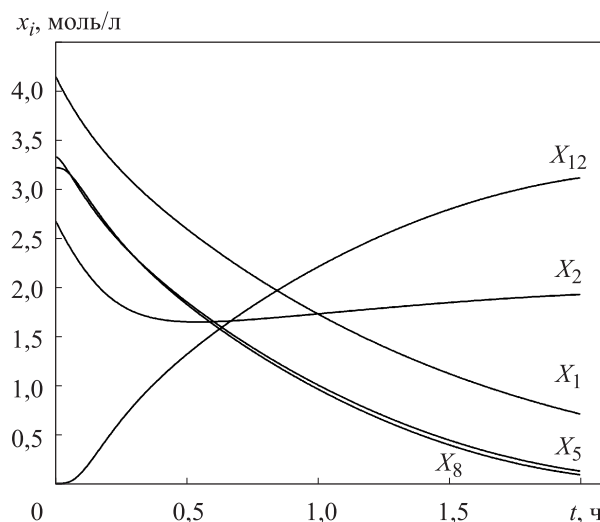
Номер	Параметр		Размер популяции m	Время решения задачи, с	Число удачных запусков	$F_{\max}(x(0))$
	Мутации par_mut	Кроссовера par_cross				
13	0,9	0,9	10	4	0	2,218–2,937
14			20	8		3,071–3,105
15			30	12		3,108–3,107
16			40	16	2	3,103–3,107
17			50	20	19	3,108–3,109
18			60	24	20	3,109

В результате проведенных расчетов установлено, что для реакции (8) оптимален следующий набор концентраций исходных веществ (моль/л):

$$x_1^*(0) = 4,156, \quad x_2^*(0) = 2,686, \quad x_5^*(0) = 3,326, \quad x_8^*(0) = 3,212. \quad (14)$$

Наибольшее значение концентрации целевого продукта X_{12} реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида составляет 3,109 моль/л.

Динамика концентрации продукта реакции X_{12} , определенная при начальных значениях концентрации исходных веществ (14), показана на рисунке.



Изменение оптимальной концентрации продукта реакции X_{12} и оптимальных концентраций реагентов X_1, X_2, X_5, X_8

Обсуждение полученных результатов. Для оценки решения задачи (8)–(13), полученного с использованием разработанного алгоритма, сравним его с решением, найденным с помощью метода Хука — Дживса.

Поскольку задача содержит условия (11), (12), для контроля выхода решения за их границы необходимо применить метод штрафов. В связи с этим авторы разработали программу на языке программирования *Delphi* для решения оптимизационной задачи (8)–(13) на основе методов штрафов и Хука — Дживса.

Для задания начальной точки поиска решения задачи (8)–(13) необходимо учесть следующие особенности протекания реакции (8):

1) основным исходным веществом является X_1 , поэтому в реакционной смеси его концентрация должна превышать концентрации остальных веществ;

2) вещество X_2 — катализатор, поэтому его концентрация должна быть ниже концентрации других веществ.

С учетом специфики решаемой задачи в качестве начального приближения решения задачи (8)–(13) выбран набор концентраций веществ $x_1^*(0) = 6$, $x_2^*(0) = 1,38$, $x_5^*(0) = 3$, $x_8^*(0) = 3$.

В результате решения задачи (8)–(13) с использованием методов штрафов и Хука — Дживса получен оптимальный набор начальных концентраций (моль/л): $x_1^{hd}(0) = 4,127$, $x_2^{hd}(0) = 2,689$, $x_5^{hd}(0) = 3,339$, $x_8^{hd}(0) = 3,225$. Тогда концентрация вещества X_{12} в конечный момент времени протекания реакции составит 3,108 моль/л.

Относительная погрешность вектора начальных концентраций:

$$\delta(x^*(0)) = \frac{\|x^{hd}(0) - x^*(0)\|}{\|x^{hd}(0)\|} \cdot 100\% = 0,51\%,$$

где

$$\|x^{hd}(0) - x^*(0)\| = \sqrt{\sum_{i=1}^n |x_i^{hd}(0) - x_i^*(0)|^2}; \quad \|x^{hd}(0)\| = \sqrt{\sum_{i=1}^n |x_i^{hd}(0)|^2}.$$

Относительная погрешность значения критерия оптимальности: $\delta(F(x^*(0))) = 0,032\%$.

С учетом полученных погрешностей решение оптимизационной задачи (8)–(13), найденное с использованием предложенного алгоритма, незначительно отличается от решения, определенного методами штрафов и Хука — Дживса. Поэтому можно сделать вывод о корректной работе алгоритма поиска оптимальных начальных концентраций веществ. Важное преимущество алгоритма — отсутствие необходимости задавать начальное приближение решения задачи.

Заключение. Разработанный численный алгоритм позволяет определить оптимальные начальные концентрации веществ каталитической реакции. В основу алгоритма положен метод дифференциальной эволюции, который позволяет найти решение оптимизационной задачи независимо от начального приближения. При этом алгоритм модифицирован с учетом физико-химических особенностей задачи. Предусмотрено выполнение условия, касающегося суммарной концентрации реагентов и ограничений, накладываемых на значения начальных концентраций веществ.

Работа алгоритма апробирована на реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида под действием комплексов марганца. В результате вычислений определены оптимальные начальные концентрации реагентов, при которых достигается наибольшее значение концентрации целевого продукта реакции. Приведено сравнение полученного решения задачи поиска оптимальных начальных концентраций с решением, вычисленным методами штрафов и Хука — Дживса. Рассчитанная относительная погрешность решения задачи не превышает 1 %.

Разработанный алгоритм и программу можно применять для поиска оптимальных начальных концентраций других каталитических реакций, изменив критерий оптимальности и блок решения прямой кинетической задачи.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Biegler L.T. Integrated optimization strategies for dynamic process operations. *Theor. Found. Chem. Eng.*, 2017, vol. 51, no. 6, pp. 910–927. DOI: <https://doi.org/10.1134/S004057951706001X>
- [2] Островский Г.М., Зиятдинов Н.Н., Емельянов И.И. Синтез оптимальных систем простых ректификационных колонн с рекуперацией тепла. *ДАН*, 2015, т. 461, № 2, с. 189–192. EDN: TLOXAH
- [3] Santos L., Villas-Bôas F., Oliveira A.R., et al. Optimized choice of parameters in interior-point methods for linear programming. *Comput. Optim. Appl.*, 2019, vol. 73, no. 1, pp. 535–574. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10589-019-00079-9>
- [4] Антипина Е.В., Мустафина С.А., Антипин А.Ф. Численный алгоритм идентификации кинетической модели химической реакции. *Вестник Технологического университета*, 2019, т. 22, № 9, с. 13–17. EDN: AGWATA
- [5] Mohamed A.W., Mohamed A.K. Adaptive guided differential evolution algorithm with novel mutation for numerical optimization. *Int. J. Mach. Learn. & Cyber.*, 2019, vol. 10, no. 4, pp. 253–277. DOI: <https://doi.org/10.1007/s13042-017-0711-7>
- [6] Xue B., Yao X. A survey on evolutionary computation approaches to feature selection. *IEEE Trans. Evol. Comput.*, 2016, vol. 20, iss. 4, pp. 606–626. DOI: <https://doi.org/10.1109/TEVC.2015.2504420>

- [7] Рутковская Д., Пилиньский М., Рутковский И. Нейронные сети, генетические алгоритмы и нечеткие системы. М., Горячая линия-Телеком, 2013.
- [8] Карпенко А.П. Эволюционные операторы популяционных алгоритмов глобальной оптимизации. *Математика и математическое моделирование*, 2018, № 1, с. 59–89. DOI: <https://doi.org/10.24108/mathm.0118.0000103>
- [9] Wang Y., Li H.-X., Huang T., et al. Differential evolution based on covariance matrix learning and bimodal distribution parameter setting. *Appl. Soft Comput.*, 2014, vol. 18, pp. 232–247. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.asoc.2014.01.038>
- [10] Zhu H., He Y., Tsang E., et al. Discrete differential evolutions for the discounted {0–1} knapsack problem. *Int. J. Bio-Inspir. Com.*, 2017, vol. 10, no. 4, pp. 219–238. DOI: <https://doi.org/10.1504/IJBIC.2017.10008802>
- [11] Storn R., Price K. Differential evolution — a simple and efficient heuristic for global optimization over continuous spaces. *J. Glob. Optim.*, 1997, vol. 11, no. 4, pp. 341–359. DOI: <https://doi.org/10.1023/A:1008202821328>
- [12] Ковалевич А.А., Якимов А.И., Албкеират Д.М. Исследование стохастических алгоритмов оптимизации для применения в имитационном моделировании систем. *Информационные технологии*, 2011, № 8, с. 55–60. EDN: NYJFGH
- [13] Das S., Suganthan P.N. Differential evolution: a survey of the state-of-the-art. *IEEE Trans. Evol. Comput.*, 2011, vol. 15, iss. 1, pp. 4–31. DOI: <https://doi.org/10.1109/TEVC.2010.2059031>
- [14] Пупков К.А., Феоктистов В.А. Алгоритм дифференциальной эволюции для задач технического проектирования. *Информационные технологии*, 2004, № 8, с. 25–31.
- [15] El-Quliti S.A., Ragab A.H., Abdelaal R., et al. A nonlinear goal programming model for university admission capacity planning with modified differential evolution algorithm. *Math. Probl. Eng.*, 2015, vol. 2015, art. 892937. DOI: <https://doi.org/10.1155/2015/892937>
- [16] Mohamed A.W. A novel differential evolution algorithm for solving constrained engineering optimization problems. *J. Intell. Manuf.*, 2018, vol. 29, no. 4, pp. 659–692. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10845-017-1294-6>
- [17] Wang Y, Liu Z.-Z., Li J., et al. On the selection of solutions for mutation in differential evolution. *Front. Comput. Sci.*, 2018, vol. 12, no. 4, pp. 297–315. DOI: <https://doi.org/10.1007/s11704-016-5353-5>
- [18] Mohamed A.W. An improved differential evolution algorithm with triangular mutation for global numerical optimization. *Comput. Ind. Eng.*, 2015, vol. 85, pp. 359–375. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.cie.2015.04.012>
- [19] Новичкова А.В. Численный анализ реакционной способности олефинов и алюминийорганических соединений на основе кинетических моделей частных и общих реакций. Дис. ... канд. физ.-мат. наук. Уфа, БашГУ, 2015.

[20] Новичкова А.В., Масков Д.Ф., Бобренева Ю.О. и др. Построение и оптимизация кинетических моделей реакции синтеза N-(адамантил)ацетамида на основе информационно-аналитической автоматизированной системы «Chemkinoptima» (ИААС). *Башкирский химический журнал*, 2013, т. 20, № 3, с. 63–70.

Антипина Евгения Викторовна — канд. физ.-мат. наук, старший научный сотрудник управления научно-исследовательских работ УУНиТ (Российская Федерация, 450076, Уфа, ул. Заки Валиди, д. 32).

Мустафина Светлана Анатольевна — д-р физ.-мат. наук, профессор, заведующая кафедрой «Математическое моделирование» УУНиТ (Российская Федерация, 450076, Уфа, ул. Заки Валиди, д. 32).

Антипин Андрей Федорович — канд. техн. наук, доцент кафедры «Прикладная информатика и программирование» Стерлитамакского филиала УУНиТ (Российская Федерация, 453103, Стерлитамак, пр-т Ленина, д. 49).

Просьба ссылаться на эту статью следующим образом:

Антипина Е.В., Мустафина С.А., Антипин А.Ф. Алгоритм поиска оптимальных начальных концентраций веществ каталитической реакции на основе эволюционных вычислений. *Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана. Сер. Естественные науки*, 2024, № 2 (113), с. 4–21. EDN: HIUULJ

SEARCH ALGORITHM TO FIND OPTIMAL INITIAL CONCENTRATIONS OF THE CATALYTIC REACTION SUBSTANCES BASED ON THE EVOLUTIONARY COMPUTATION

E.V. Antipina¹

stepashinaev@ya.ru

S.A. Mustafina¹

mustafina_sa@mail.ru

A.F. Antipin²

andrejantipin@ya.ru

¹Ufa University of Science and Technology, Ufa, Russian Federation

²Sterlitamak Branch, Ufa University of Science and Technology, Sterlitamak, Russian Federation

Abstract

The paper proposes a numerical algorithm to determine optimal initial concentrations of the catalytic reaction substances. In general, it presents the problem statement in searching for optimal reagents based on the reaction mathematical description. To solve the problem, an algorithm is formulated that is based on the differential evolution method. The method advantage lies in the lack of sensitivity in problem solving to select

Keywords

Optimal initial concentrations, differential evolution, reaction kinetic model, evolutionary computation, catalytic reaction

a starting point, where the iterative procedure for finding a solution begins. Differential evolution algorithm is modified taking into account the problem physico-chemical limitations. A software program implementing the created algorithm is used to conduct a computational experiment in regard to the N-(adamantyl)acetamide synthesis catalytic reaction. Kinetic model of the N-(adamantyl)acetamide synthesis reaction is presented, which formulates the problem of determining the reagent optimal concentrations. Maximum value of the target product concentration at the reaction final stage is considered as the optimality criterion. Vector of the reagents initial concentrations is determined, where the reaction product highest concentration is achieved. Insignificant deviation is demonstrated in solving the problem of finding the substances optimal initial concentrations obtained using the developed algorithm from the solution found by the penalty and Hook — Jeeves methods

Received 07.04.2023

Accepted 13.06.2023

© Author(s), 2024

This research was funded by the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation (scientific code FZWU-2023-0002)

REFERENCES

- [1] Biegler L.T. Integrated optimization strategies for dynamic process operations. *Theor. Found. Chem. Eng.*, 2017, vol. 51, no. 6, pp. 910–927. DOI: <https://doi.org/10.1134/S004057951706001X>
- [2] Ostrovskii G.M., Ziyatdinov N.N., Emel'yanov I.I. Synthesis of optimal systems of simple distillation columns with heat recovery. *Dokl. Chem.*, 2015, vol. 461, no. 1, pp. 89–92. DOI: <https://doi.org/10.1134/S0012500815030052>
- [3] Santos L., Villas-Bôas F., Oliveira A.R., et al. Optimized choice of parameters in interior-point methods for linear programming. *Comput. Optim. Appl.*, 2019, vol. 73, no. 1, pp. 535–574. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10589-019-00079-9>
- [4] Antipina E.V., Mustafina S.A., Antipin A.F. Numerical algorithm of identifying the kinetic model of a chemical reaction. *Vestnik Tekhnologicheskogo universiteta* [Herald of Technological University], 2019, vol. 22, no. 9, pp. 13–17 (in Russ.). EDN: AGWATA
- [5] Mohamed A.W., Mohamed A.K. Adaptive guided differential evolution algorithm with novel mutation for numerical optimization. *Int. J. Mach. Learn. & Cyber.*, 2019, vol. 10, no. 4, pp. 253–277. DOI: <https://doi.org/10.1007/s13042-017-0711-7>
- [6] Xue B., Yao X. A survey on evolutionary computation approaches to feature selection. *IEEE Trans. Evol. Comput.*, 2016, vol. 20, iss. 4, pp. 606–626. DOI: <https://doi.org/10.1109/TEVC.2015.2504420>

- [7] Rutkovskaya D., Pilinskiy M., Rutkovskiy I. Neyronnye seti, geneticheskie algoritmy i nechetkie sistemy [Neural networks, genetic algorithms and fuzzy systems]. Moscow, Goryachaya liniya-Telekom Publ., 2013.
- [8] Karpenko A.P. Evolutionary operators for global optimization population-based algorithms. Experience of systematization. *Matematika i matematicheskoe modelirovanie* [Mathematics and Mathematical Modeling], 2018, no. 1, pp. 59–89 (in Russ.). DOI: <https://doi.org/10.24108/mathm.0118.0000103>
- [9] Wang Y., Li H.-X., Huang T., et al. Differential evolution based on covariance matrix learning and bimodal distribution parameter setting. *Appl. Soft Comput.*, 2014, vol. 18, pp. 232–247. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.asoc.2014.01.038>
- [10] Zhu H., He Y., Tsang E., et al. Discrete differential evolutions for the discounted {0–1} knapsack problem. *Int. J. Bio-Inspir. Com.*, 2017, vol. 10, no. 4, pp. 219–238. DOI: <https://doi.org/10.1504/IJBIC.2017.10008802>
- [11] Storn R., Price K. Differential evolution — a simple and efficient heuristic for global optimization over continuous spaces. *J. Glob. Optim.*, 1997, vol. 11, no. 4, pp. 341–359. DOI: <https://doi.org/10.1023/A:1008202821328>
- [12] Kovalevich A.A., Yakimov A.I., Albkeirat D.M. Research of optimization stochastic algorithms for application in simulations of systems. *Informatsionnye tekhnologii* [Information Technologies], 2011, no. 8, pp. 55–60 (in Russ.). EDN: NYJFGH
- [13] Das S., Suganthan P.N. Differential evolution: a survey of the state-of-the-art. *IEEE Trans. Evol. Comput.*, 2011, vol. 15, iss. 1, pp. 4–31. DOI: <https://doi.org/10.1109/TEVC.2010.2059031>
- [14] Pupkov K.A., Feoktistov V.A. Differential evolution algorithm for the technical design problems. *Informatsionnye tekhnologii* [Information Technologies], 2004, no. 8, pp. 25–31 (in Russ.).
- [15] El-Quliti S.A., Ragab A.H., Abdelaal R., et al. A nonlinear goal programming model for university admission capacity planning with modified differential evolution algorithm. *Math. Probl. Eng.*, 2015, vol. 2015, art. 892937. DOI: <https://doi.org/10.1155/2015/892937>
- [16] Mohamed A.W. A novel differential evolution algorithm for solving constrained engineering optimization problems. *J. Intell. Manuf.*, 2018, vol. 29, no. 4, pp. 659–692. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10845-017-1294-6>
- [17] Wang Y., Liu Z.-Z., Li J., et al. On the selection of solutions for mutation in differential evolution. *Front. Comput. Sci.*, 2018, vol. 12, no. 4, pp. 297–315. DOI: <https://doi.org/10.1007/s11704-016-5353-5>
- [18] Mohamed A.W. An improved differential evolution algorithm with triangular mutation for global numerical optimization. *Comput. Ind. Eng.*, 2015, vol. 85, pp. 359–375. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.cie.2015.04.012>
- [19] Novichkova A.V. Chislennyy analiz reaktsionnoy sposobnosti olefinov i alyuminiy-organicheskikh soedineniy na osnove kineticheskikh modeley chastnykh i obshchikh

reaktsiy. Dis. kand. fiz.-mat. nauk [Numerical analysis of olefins reactivity and organoaluminum compounds based on kinetic models of particular and general reactions. Cand. Sc. (Eng.) Diss.]. Ufa, Bashkir SU, 2015 (in Russ.).

[20] Novichkova A.V., Maskov D.F., Bobreneva Yu.O., et al. Construction and optimization of kinetic models of reaction synthesis N-(adamantyl)acetamide based on information and analytical automated system “Chemkinoptima” (IAAS). *Bashkirskiy khimicheskii zhurnal* [Bashkir Chemistry Journal], 2013, vol. 20, no. 3, pp. 63–70 (in Russ.).

Antipina E.V. — Cand. Sc. (Phys.-Math.), Senior Researcher, Research Department, Ufa University of Science and Technology (Zaki Validi ul. 32, Ufa, 450076 Russian Federation).

Mustafina S.A. — Dr. Sc. (Phys.-Math.), Professor, Head of the Department of Mathematical Modeling, Ufa University of Science and Technology (Zaki Validi ul. 32, Ufa, 450076 Russian Federation).

Antipin A.F. — Cand. Sc. (Eng.), Assoc. Professor, Department of Applied Informatics and Programming, Sterlitamak Branch, Ufa University of Science and Technology (Lenina prospekt 49, Sterlitamak, 453103 Russian Federation).

Please cite this article in English as:

Antipina E.V., Mustafina S.A., Antipin A.F. Search algorithm to find optimal initial concentrations of the catalytic reaction substances based on the evolutionary computation. *Herald of the Bauman Moscow State Technical University, Series Natural Sciences*, 2024, no. 2 (113), pp. 4–21 (in Russ.). EDN: HIUULJ