

Multicriteria optimization of chemical reactions using interval analysis. Parallel scheme for implementing the computational process

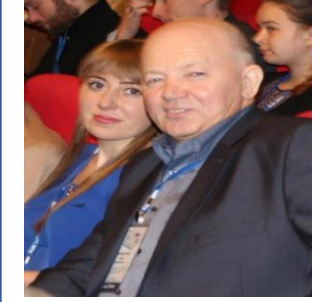
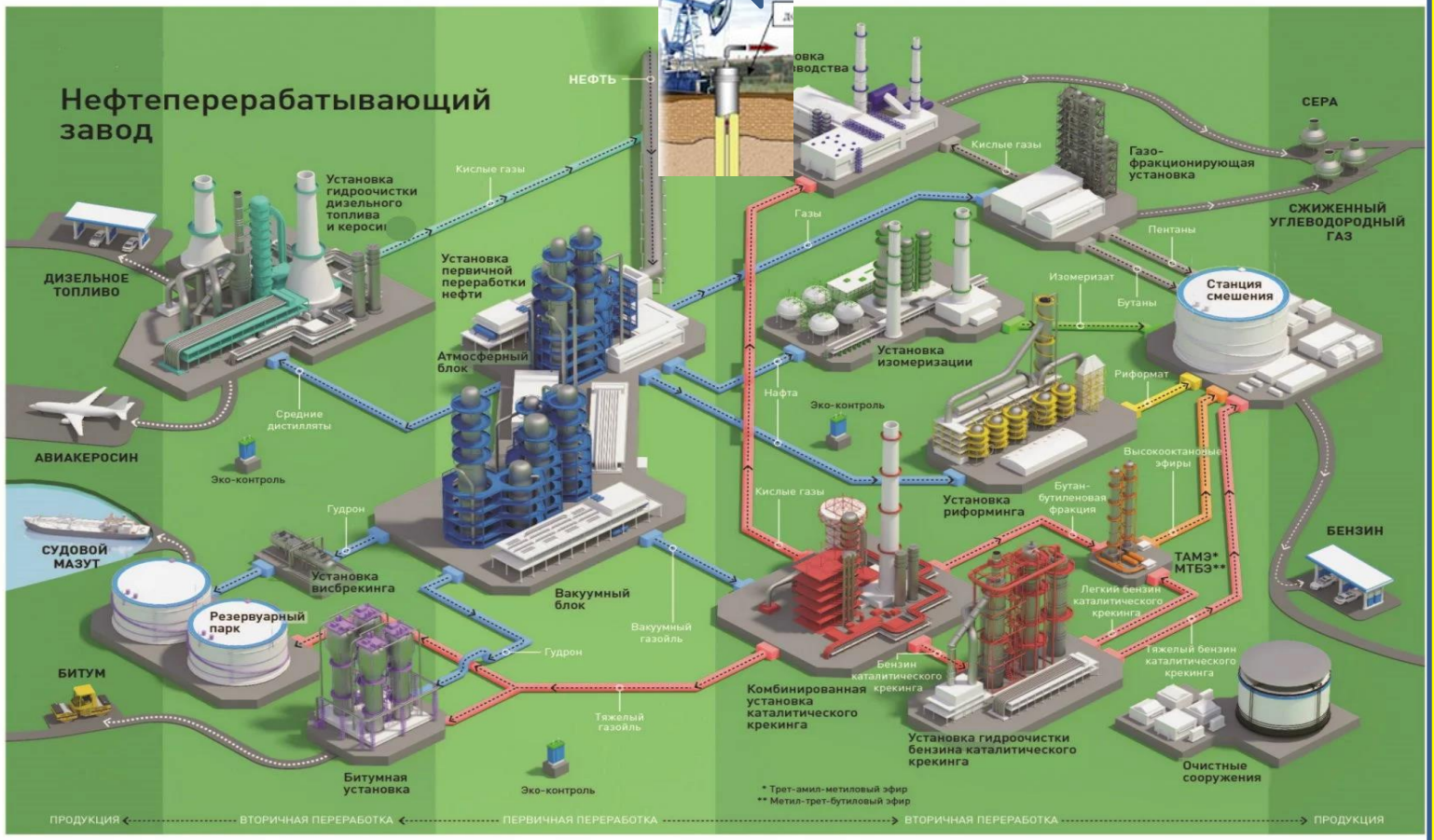
Kamila Koledina and Irek Gubaydullin

Ufa State Petroleum Technological University, Ufa, Russia
Institute of Petrochemistry and Catalysis of RAS, Ufa, Russia

Докладчик - *Губайдуллин Ирек Марсович*, профессор, д.ф.-м.н., зав. лаб. математической химии (МАТ_ХИМ) ИНК УФИЦ РАН, профессор кафедры технологии нефти и газа уфимского государственного нефтяного технического университета (УГНТУ).

Работа выполнена в рамках реализации проекта РНФ № 21-71-20047, 2021-2024 г.г.
Институт нефтехимии и катализа УФИЦ РАН и Суперкомпьютерный Центр Коллективного пользования (ЦКП) Института прикладной математики им. М.В. Келдыша РАН
И.о. ЦКП, д.ф.-м.н., Поляков Сергей Владимирович

«Жизненный цикл» бензина от нефтяной скважины до автозаправочной станции – создание компьютерного аналога цикла и тренажера для каждой установки на ближайшее 8 лет - 2022-2030 гг



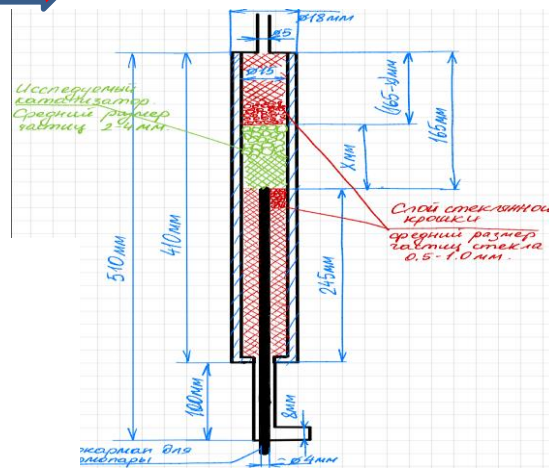
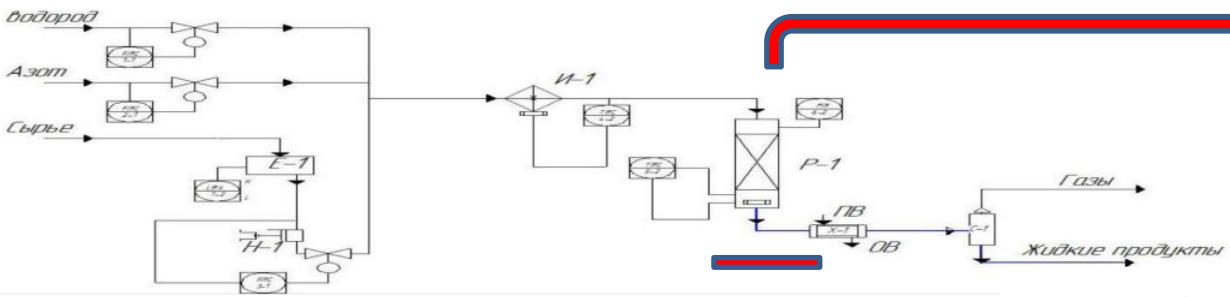
Московский государственный технический университет им. Э.Н. Баумана (МГТУ, Москва)

(№ 12-07-00324_А, 2012-2014 гг.; № 15-07-01764_А, 2015-2017 гг.; № 17-301-50011_мол_нр, 2017г.; № 18-37-00015_мол_а, 2018-2020 гг.; № 18-07-00341_А, 2018-2020 гг.)

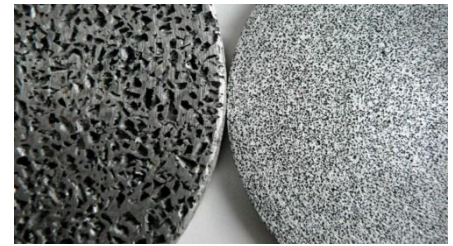
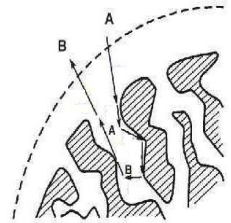
Институт вычислительной математики и математической геофизики СО РАН (ИВМиМГ, Новосибирск)

(17-31-50023_мол_нр, 2017г.; 19-37-50025_мол_нр., 2019 г.)

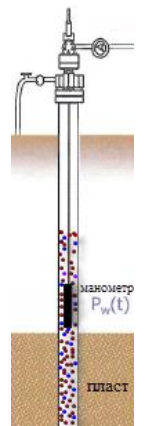
1. Математическое моделирование в пористом зерне катализатора



$$\varepsilon_k \frac{dy_i}{dt} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 D^* \frac{\partial y_i}{\partial r} - r^2 \mu y_i \right) + \frac{\gamma_k S_k}{C_0} \sum_{j=1}^J \nu_{ij} W_j \quad (1)$$

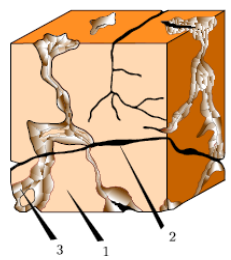


2. Математическое моделирование массопереноса в коллекторах трещиновато-порового типа



Скважина

Керн → образец горной породы



$$\varphi_f c \frac{\partial \Delta P_f}{\partial t} - \frac{k_f}{\mu} \frac{\partial^2 \Delta P_f}{\partial r^2} + u^*(\Delta P_f, t) = 0$$

$$\Delta P_f = \frac{q\mu}{4\pi k_f h} E_i \left(\frac{r_w^2}{4\chi t} \right)$$

Что объединяет – математические модели в виде дифференциальных уравнений в частных производных второго порядка с источниками членами химических реакций !!!

Математическое описание прямой и обратной кинетических задач

1) без изменения реакционного объема

$$\frac{d\tilde{\alpha}_i}{dt} = \sum_{j=1}^J S_{ij} w_j, \quad i = 1 \dots M$$

2) с учетом изменения числа молей реакционной смеси

$$\frac{dx_i}{dt} = \frac{F_i - x_i F_N}{N}, \quad i = 1 \dots M,$$

$$F_i = \sum_{j=1}^J S_{ij} W_j, \quad \frac{dN}{dt} = F_N = \sum_{j=1}^J \delta_j W_j,$$

$$W_j = w_j \frac{V_p}{N_0}, \quad \delta_j = \sum_{i=1}^M S_{ij}$$

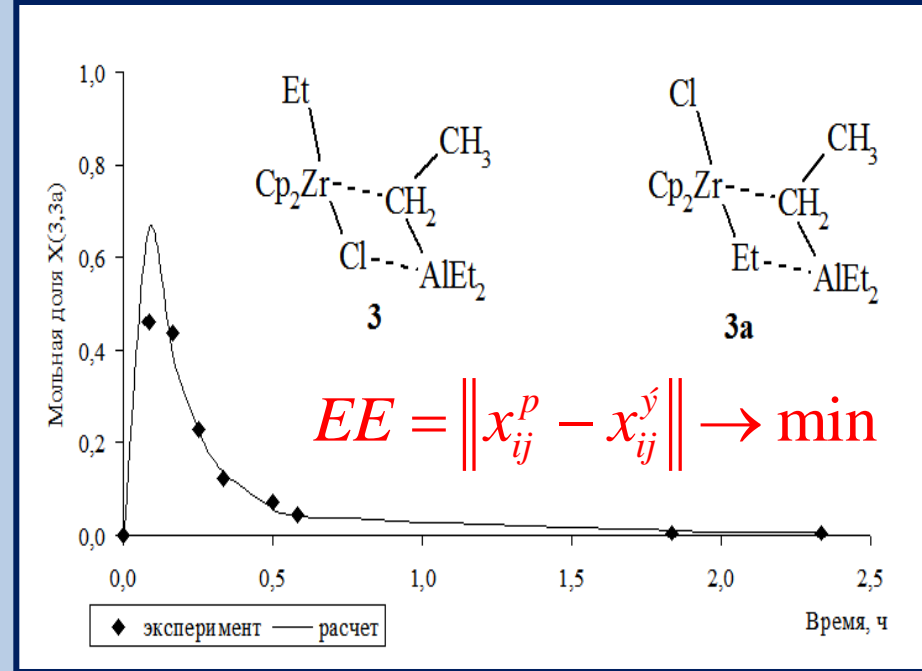
3) с учетом начального количества катализатора

$$\frac{dx_i}{dt} = \frac{C_k}{V_p} \sum_{j=1}^J S_{ij} w_j, \quad i = 1 \dots M$$

$$w_j = k_j \prod_{i=1}^M (x_i \cdot N)^{|\alpha_{ij}|} - k_{-j} \prod_{i=1}^M (x_i \cdot N)^{\beta_{ij}},$$

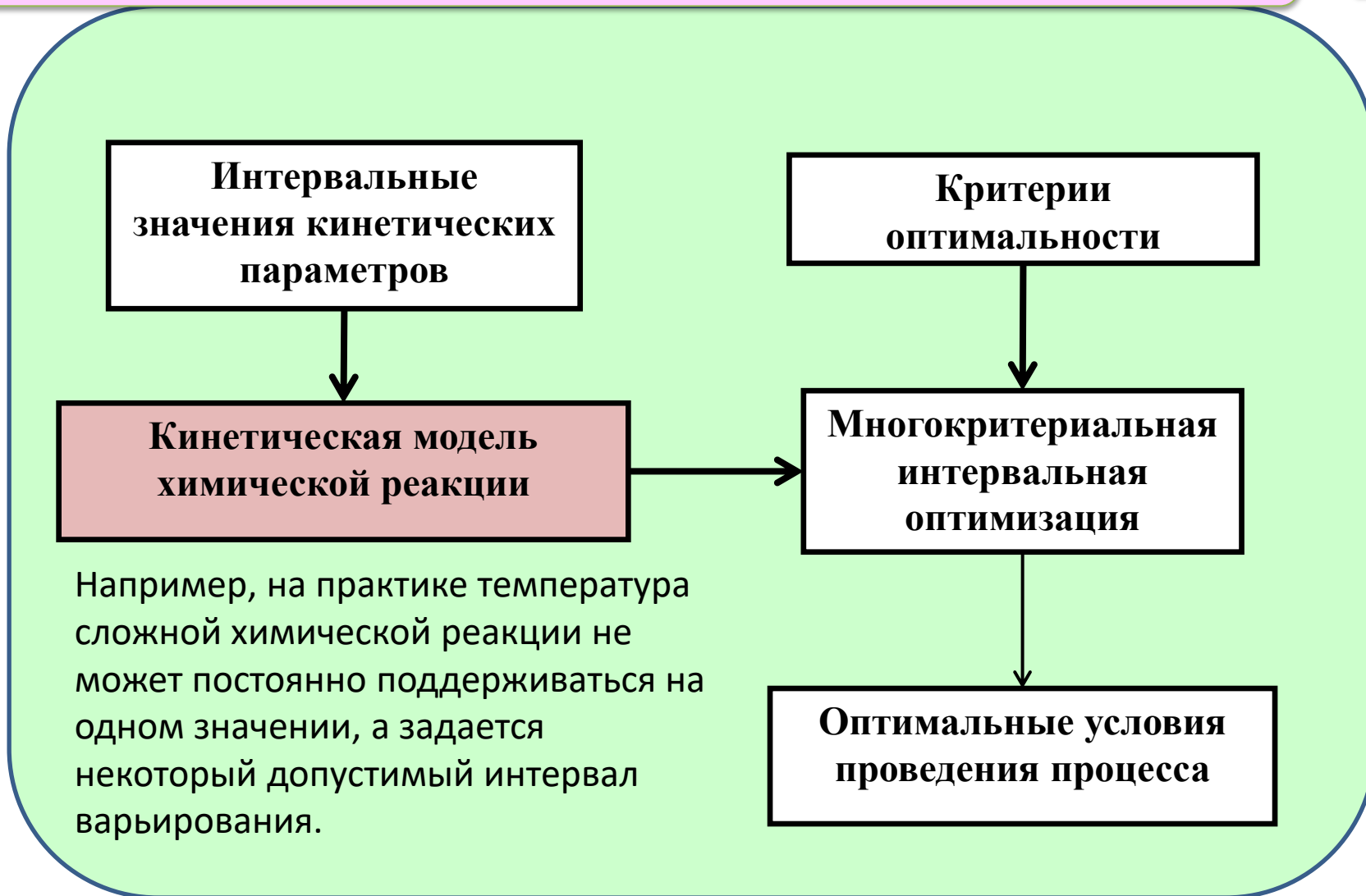
$$k_{\pm j} = k_{\pm j}^0 \cdot \exp\left(-\frac{E_j^{\pm}}{RT}\right),$$

$$t = t_0, \quad x_i(0) = x_i^0.$$



Сравнение промежуточных комплексов (3), (3а)
(реакция циклоалюминирования олефинов в
присутствии катализатора Cp_2ZrCl_2)

где x_i – концентрации веществ (мольные доли);
 M – количество веществ; J – количество стадий;
 S_{ij} – стехиометрические коэффициенты;
 N – относительное изменение числа молей (для 1 и 3 модели $N=1$);
 w_j – скорость j -ой стадии (1/с);
 k_j – приведенные кинетические константы (1/с);
 E – энергия активации;
 t – время (с); C_k – количество катализатора (ммоль);
 V_p – объем реакционной смеси (мл).



Замена в алгоритме численного метода всех арифметических операций и функций над вещественными числами их интервальными аналогами

Эффект Мура – чрезмерное увеличение ширины интервального решения по сравнению с истинным

Двусторонний метод решения интервальной кинетической задачи*



Б.С. Добронец. Интервальная математика. – Учебное пособие. Краснояр. Гос. Ун-т., 2004, 216 с.

Двусторонний метод решения интервальной кинетической задачи

Функция правых частей φ_i изотонна по параметру k_j , если $\frac{\partial \varphi_i}{\partial k_j} > 0$ и антитонна по k_j , если $\frac{\partial \varphi_i}{\partial k_j} < 0$, иначе φ_i не зависит от k_j .

Пусть в (1) φ_i изотонна по k_l , и антитонна по k_m , где $l = 1, \dots, L; m = 1, \dots, M; L + M = J$. Тогда математическую модель можно представить в виде двусторонней системы:

$$\begin{cases} \frac{dy_i}{dt} = \varphi_i(y_1, y_2, \dots, y_i, \underline{k}_l, \bar{k}_m), \\ \frac{d\bar{y}_i}{dt} = \varphi_i(\bar{y}_1, \bar{y}_2, \dots, \bar{y}_i, \bar{k}_l, \underline{k}_m), \end{cases} \quad (1)$$

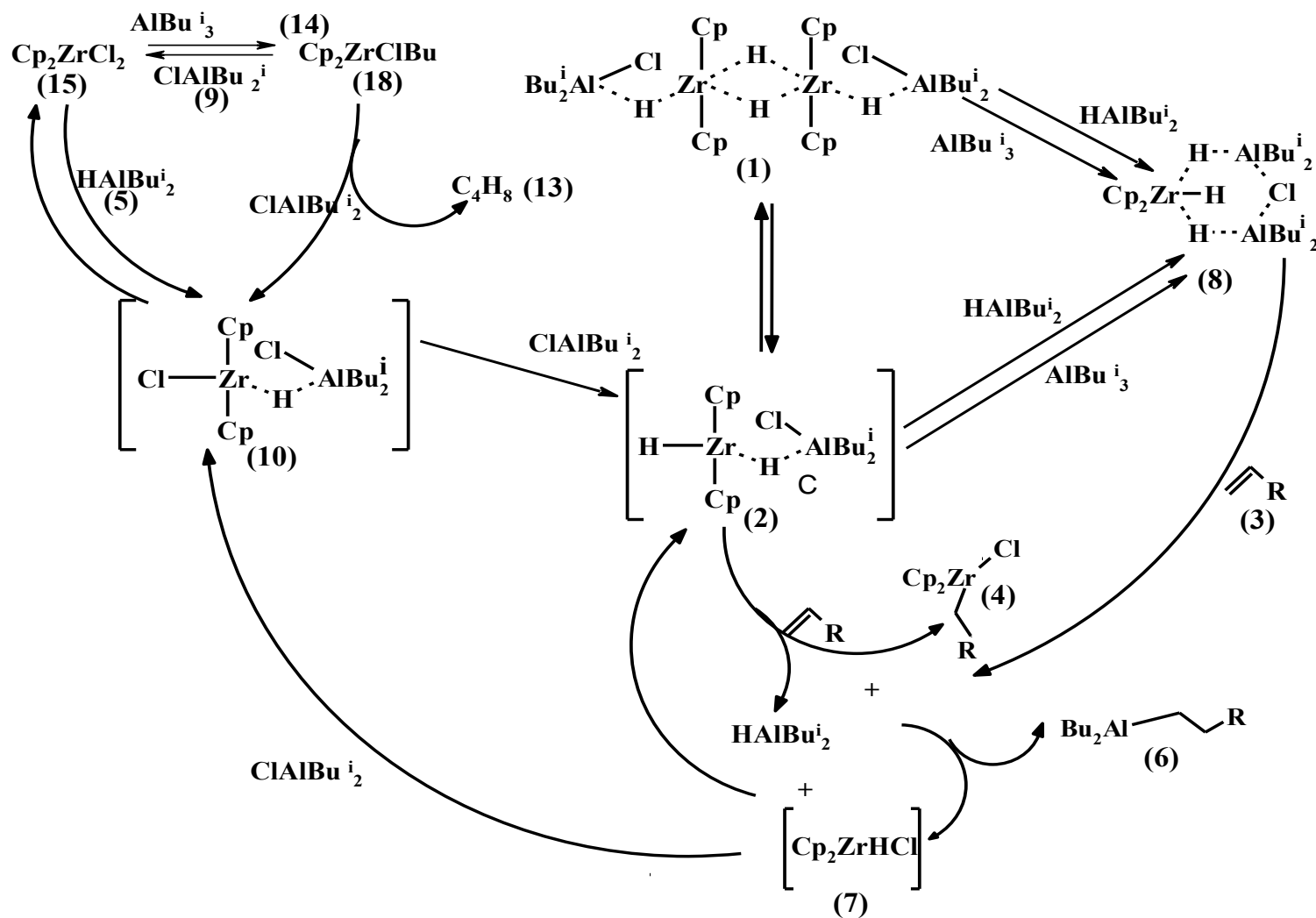
$$\underline{y}_i(0) = \bar{y}_i(0) = y_i^0.$$

где y_i – концентрация веществ химической реакции, моль/л; t^* – время реакции, мин; φ_i – функции правых частей по скорости стадий реакции; L – количество веществ химической реакции; J – количество стадий химической реакции; k_1, k_2, \dots, k_j – интервальные значения констант скоростей стадий.

$$\{k_j = [\underline{k}_j, \bar{k}_j] \mid \underline{k}_j < \bar{k}_j\}, \underline{k}_j, \bar{k}_j \in R, \quad (2)$$

$$k_j = k_j^0 \exp\left(-\frac{E_j}{RT}\right). \quad (3)$$

Схема химических превращений общей реакции каталитического гидроалюминирования олефинов с триизобутилалюминием



Nurislamova, I.M.Gubaydullin, K.F.Koledina, R.R. Safin Kinetic model of the catalytic hydroalumination of olefins with organoaluminum compounds. // Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis. 2016. V. 117. Issue 1, P. 1-14.

Методы решения прямой кинетической задачи

• Многошаговый метод Гира переменного порядка



$$\dot{\mathbf{y}} = \varphi(\mathbf{y}), \mathbf{y}(0) = \mathbf{y}^0;$$

$$\mathbf{y}_{n+1} + \sum_{j=1}^k \alpha_j \mathbf{y}_{n+1-j} = h\beta\varphi(\mathbf{y}_{n+1});$$

α_j, β выбирается
из условий
аппроксимации
метода

Обратная кинетическая задача. Методы решения

- Варьируемые параметры: вектор констант скоростей стадий \mathbf{k} .
- Физико-химические ограничения на варьируемые параметры $D_{\mathbf{k}}$.
- Критерии оптимальности $F(\mathbf{k})$

$$F(\mathbf{k}) = \sum_{i=1}^I \sum_{l=1}^L \frac{|y_{il}^e - y_{il}^c(\mathbf{k})|}{y_{il}^e};$$

I этап: Генетический алгоритм, Глобальный поиск (global search) и multistart

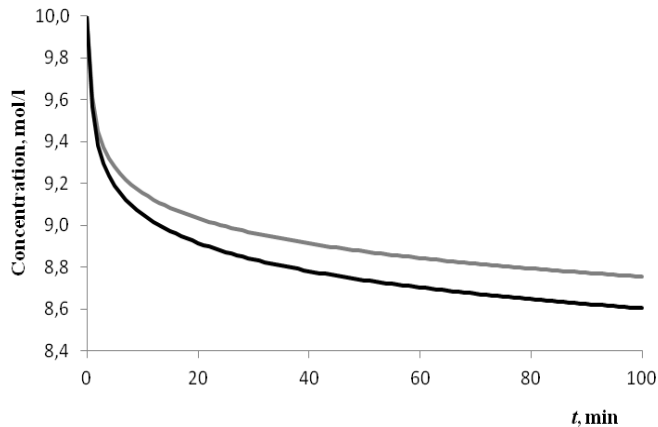
II этап: Метод Хука-Дживса (pattern search), Симуляция отжига (simulated annealing)



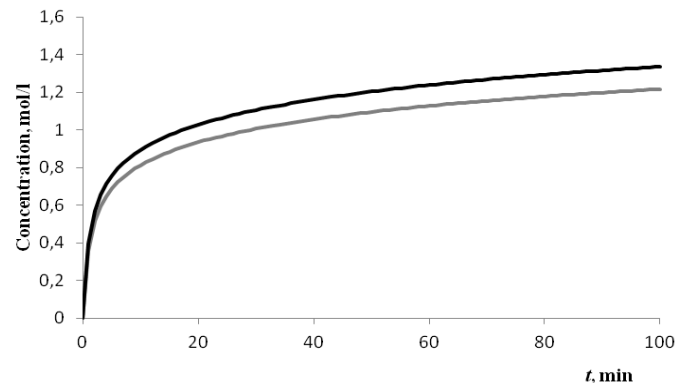
**Кинетические параметры реакций гидроалюминирования олефинов в присутствии
ТИБА (A_j – предэкспоненциальный множитель в уравнении Аррениуса, E_j – энергии
активации стадий)**

Взаимодействие CH_2CHR с $AlBu_3$ в присутствии Cp_2ZrCl_2	$\ln A_j$	$\ln A_j$	$E_j, \text{ ccal/mol}$
1) $Y_{15} + Y_{14} \rightleftharpoons Y_{18} + Y_9$	24.60; 26.60	10.6; 11.1	10.6; 11.5
2) $Y_{18} + Y_9 \rightarrow Y_{10} + Y_{13}$	20.1	11.6	11.6
3) $Y_{10} + Y_9 \rightarrow Y_2 + Y_{13} + Y_{11}$	24.20	10.6	10.6
4) $2Y_2 \rightleftharpoons Y_1$	16.60; 9.30	7.00; 4.5	7.00; 4.50
5) $Y_2 + Y_3 \rightarrow Y_4 + Y_5$	33.70	10.0	10.0
6) $Y_1 + Y_5 \rightarrow Y_8 + Y_2$	12.70	6.00	6.00
7) $Y_2 + Y_5 \rightarrow Y_8$	18.50	7.00	7.00
8) $Y_8 + Y_3 \rightarrow Y_4 + 2Y_5$	42.30	26.0	26.0
9) $Y_4 + Y_5 \rightarrow Y_7 + Y_6$	19.50	7.20	7.20
10) $Y_1 + Y_{14} \rightarrow Y_8 + Y_2 + Y_{13}$	5.50	3.9	3.9
11) $Y_7 + Y_5 \rightarrow Y_2$	24.20	6.60	6.60
12) $Y_7 + Y_9 \rightarrow Y_{10}$	45.40	27.0	27.0
13) $Y_{15} + Y_5 \rightleftharpoons Y_{10}$	9.30; 12.60	13.6; 11.1	13.6; 11.1
14) $Y_2 + Y_{14} \rightarrow Y_8 + Y_{13}$	40.50		9.2

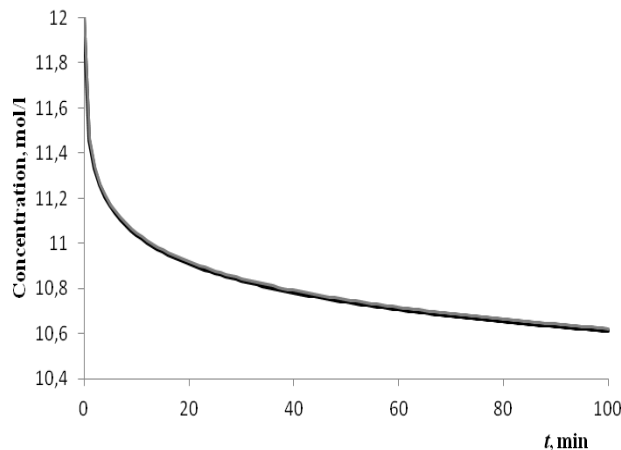
$Y_1 = [Cp_2ZrH_2 \cdot ClAlBu_2]_2$,
 $Y_2 = [Cp_2ZrH_2 \cdot ClAlBu_2]$, $Y_3 =$
 CH_2CHR , $Y_4 =$
 $Cp_2ZrCl(CH_2CH_2R)$, $Y_5 = HAlBu_2 -$
 $ДИБАГ$, $Y_6 = Bu_2Al(CH_2CH_2R)$,
 $Y_7 = Cp_2ZrHCl$, $Y_8 =$
 $[Cp_2ZrH_2 \cdot HAlBu_2 \cdot ClAlBu_2]$, $Y_9 =$
 $ClAlBu_2 - ДИБАХ$, $Y_{10} =$
 $[Cp_2ZrHCl \cdot ClAlBu_2]$, $Y_{11} =$
 Cl_2AlBu , $Y_{12} =$
 $[Cp_2ZrHBu \cdot ClAlBu_2]$, $Y_{13} = C_4H_8$,
 $Y_{14} = AlBu_3$, $Y_{15} = Cp_2ZrCl_2$, $Y_{16} =$
 $[Cp_2ZrH_2 \cdot HAlBu_2 \cdot 2(ClAlBu_2)]$,
 $Y_{17} = [Cp_2ZrH_2 \cdot HAlBu_2 \cdot ClAlBu_2]$,
 $Y_{18} = Cp_2ZrClBu$,
 $Y_{19} = ClBuAl(CH_2CH_2R)$,
 $Y_{20} = Cp_2ZrHBu \cdot ClAlBu_2$, $R =$
 C_5H_{11} , C_6H_{13} , C_7H_{15} , C_8H_{17} ,
 $Bu = C_4H_9$, $Cp = C_5H_5$.



a)



b)



c)

Рис. Интервалы расчетных значений измеряемых субстратов каталитической реакции гидроалюминирования олефинов в присутствии ТИБА: а) CH_2CHR (Y3) (кривая черного цвета – нижняя граница интервала, серого цвета – верхняя граница интервала) б) Bu_2AlR (Y6) (кривая черного цвета – верхняя граница интервала, серого цвета – нижняя граница интервала) в) $AlBu_3$ (Y14)

На графиках представлены значения концентраций в интервале температур [10°C, 15°C].

Постановка задачи многокритериальной интервальной оптимизации

12

Вектор интервальных варьируемых параметров

$$X = (x_1, x_2, x_3, x_4, x_5, \dots),$$

x_1 – температура реакции; x_2 начальные концентрации реагентов; x_3 – время реакции; x_4 – вид катализатора; и др.

Прямые ограничения на варьируемые параметры

$$X \in [X^{\min}, X^{\max}]: x_1 \in [x_1^-, x_1^+]; x_2 \in [x_2^-, x_2^+]; x_3 \in [x_3^-, x_3^+]; x_4 \in [x_4^-, x_4^+]; \\ x_5 \in [x_5^-, x_5^+]; \dots$$

Вектор-функция интервальных критериев оптимальности

$$F(X) = (f_1(X), f_2(X), f_3(X), \dots)$$

$$\max_{X \in D_X} F(X) = F(X^*) = F^*$$

Многокритериальная оптимизация условий проведения реакции гидроалюминирования олефинов с ТИБА

- Вектор варьируемых параметров $X=(x_1, x_2)$, where x_1 – нижняя граница температуры реакции, T ; x_2 – верхняя граница температуры реакции.

- Тогда вектор функция критериев оптимальности $F(X)=(f_1(X), f_2(X))$:

В качестве критерия оптимальности выбрана конверсия исходного олефина в виде минимизации выхода: $f_1(X) = y_{\text{CH}_2\text{CHR}(Y_3)}(T) \rightarrow \min$

Тогда вектор функция критериев оптимальности $F(X)=(mid f_1(X), wid f_1(X)) \rightarrow \min$.

$$mid f_1 = \frac{f_l + \overline{f_l}}{2} \quad \text{– середина интервала}$$

$$wid f_1 = \overline{f_l} - \underline{f_l} \quad \text{– ширина интервала}$$

Параллельная схема реализации вычислительного процесса

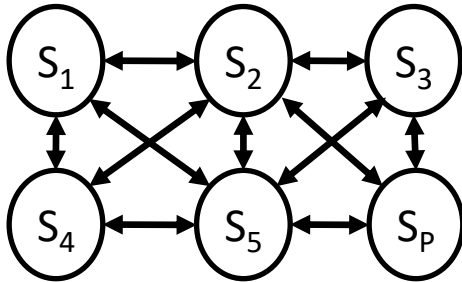


Fig. Island parallelization model for solving the multi-criteria optimization problem

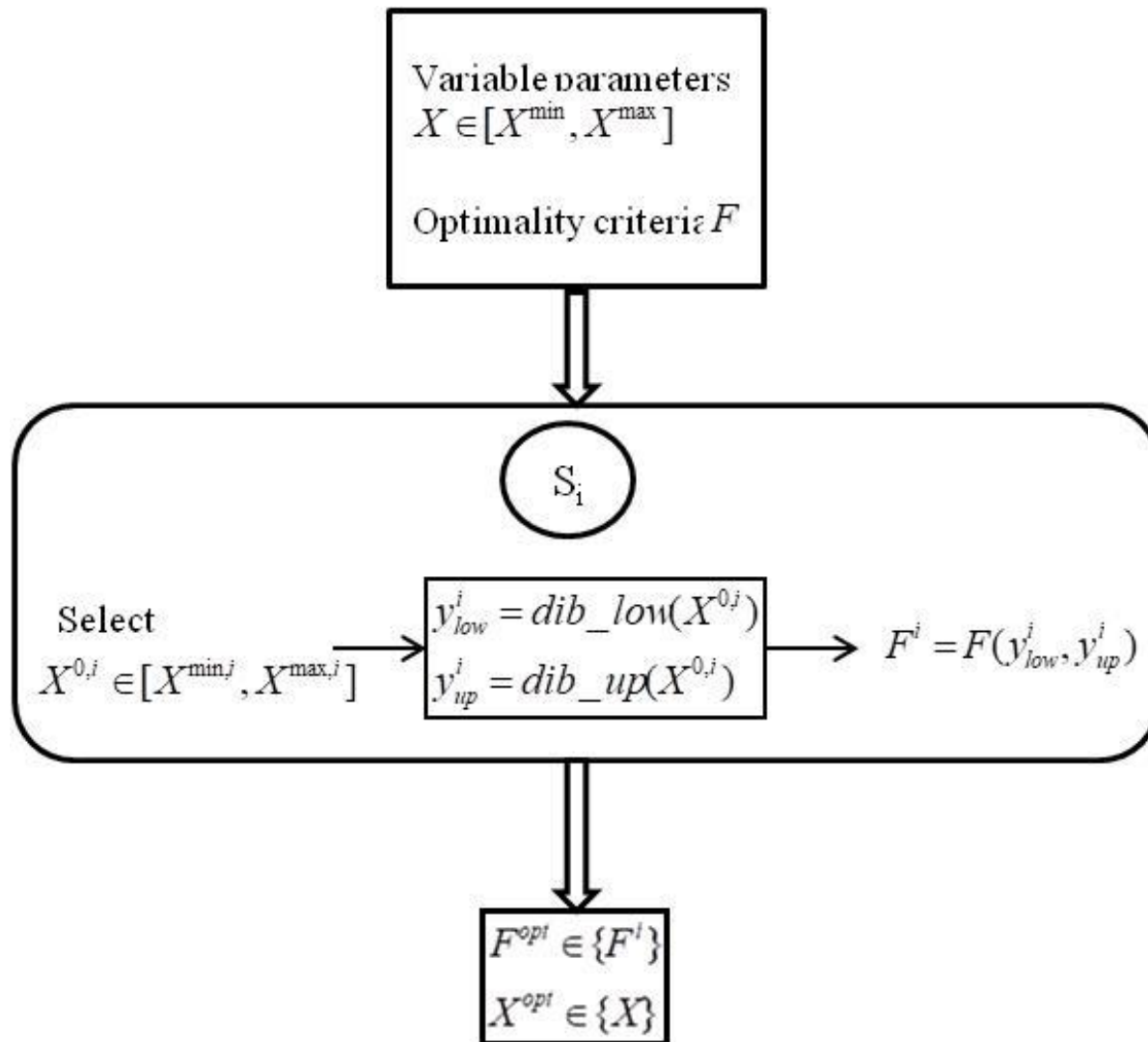
$$S = \bigcup_{i=1}^{|P|} S_i$$

where S – multipopulation, S_i – subpopulations (islands), $|P|$ - number of processors.

$$[x_i^{min}, x_i^{max}] = [x_i^{min,0}, x_i^{max,1}) \cup [x_i^{min,1}, x_i^{max,2}) \cup \dots \cup [x_i^{min,P-1}, x_i^{max,P}),$$

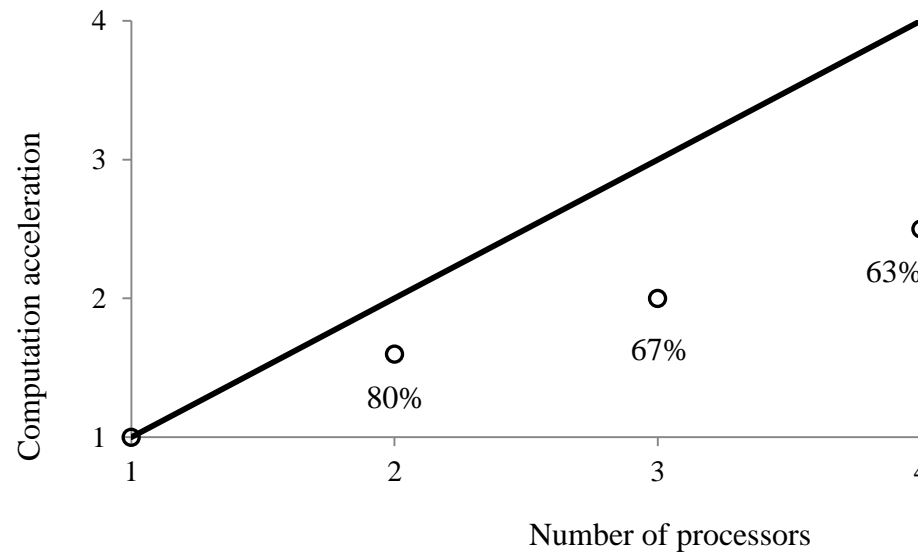
$$i = 1, 2, \dots, I$$

Схема распараллеливания вычислительного процесса решения задачи многокритериальной оптимизации химических реакций на основе интервальной кинетической модели



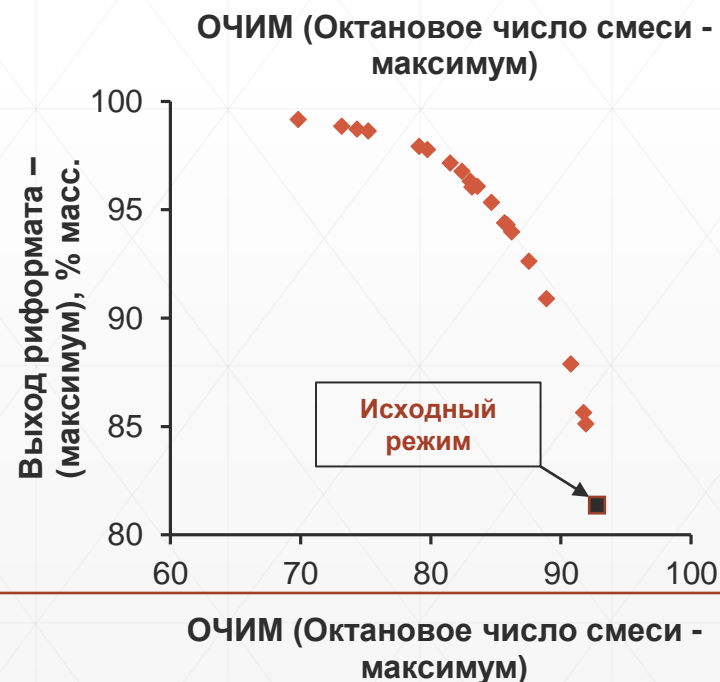
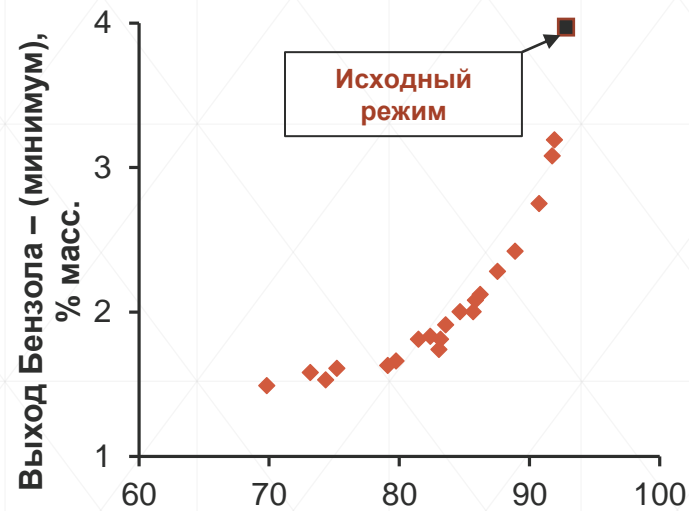
Эффективность распараллеливания решения задачи многокритериальной оптимизации химических реакций на основе интервальной кинетической модели

4-core PC Intel Core i7-8550U CPU, RAM 16GB, OS Windows 10, Software system: Matlab (MATrix LABORatore). Использовался Parallel Computing Toolbox с OpenMP.



Результаты многокритериальной оптимизации по содержанию БЕНЗОЛА

Темп-ра входа в P-1	Темп-ра входа в P-2	Темп-ра входа в P-3	ОЧИМ	БЕНЗОЛ, % масс	Выход Риформата, % масс.
400,0	400,0	400,0	69,8	1,49	99,2
453,3	417,0	411,6	74,3	1,53	98,7
448,2	433,3	456,5	82,4	1,83	96,8
479,8	486,3	484,4	90,8	2,75	87,9
499,0	440,5	443,1	83,0	1,74	96,3
466,3	429,9	437,4	79,7	1,66	97,8
426,7	440,4	489,2	87,6	2,28	92,6
441,4	495,3	418,9	83,2	1,81	96,0
420,1	419,9	428,6	75,2	1,61	98,6
405,6	408,1	424,8	73,2	1,58	98,9
434,5	455,9	463,9	84,7	2,00	95,3
462,2	483,0	473,7	88,9	2,42	90,9
449,4	422,9	466,7	83,6	1,91	96,1
488,5	442,9	463,3	85,7	2,00	94,4
459,0	477,5	455,7	85,9	2,08	94,3
424,1	425,6	460,2	81,5	1,81	97,2
466,7	425,2	435,5	79,1	1,63	97,9
479,6	478,5	500,0	91,8	3,08	85,6
432,1	473,2	466,5	86,2	2,12	94,0
465,1	497,3	496,0	91,9	3,19	85,1



✓ Предложен алгоритм определения допустимых интервальных значений варьируемых параметров при решении задачи многокритериальной оптимизации условий проведения многостадийного химического процесса.

✓ Для каталитической реакции гидроалюминирования олефинов в присутствии триизобутилалюминия определен допустимый интервал изменения температуры, который позволяет получать оптимальный интервал изменения конверсии исходного олефина.

✓ Предложен алгоритм распараллеливания вычислений для задачи многокритериальной оптимизации с использованием интервального анализа.

✓ Показатель эффективности вычислительных экспериментов (63% на 4 ядрах центрального процесса) показали, что в дальнейшем необходимо рассмотрение большего числа оптимизируемых параметров и перехода к вычислительной системе с большим количеством ядер (кто возьмется ????????).

Спасибо за внимание!
(кто возьмется ??????????)

irekmars@mail.ru, +7 (917) 340-50-22
(Научно-образовательная социальная
школа НОС_АЛМА-Уфа)

Kamila Koledina
koledinakamila@mail.ru
+79872557810