

遗传算法用于费托合成反应动力学参数优化

韩瑞峰 张永奎[#]

(忻州师范学院信息网络中心 忻州 034000 [#]山西大学计算机科学系 太原 030006)

摘 要 详细动力学模型是费托合成(Fischer-Tropsch Synthesis, FTS)反应技术从实验室走向工业化过程中最关键的基础研究项目之一。对动力学模型的参数估算一直采用传统的无约束优化算法 LM(Levenberg-Marquardt)算法, 在计算中容易因参数越界而使计算失败, 计算结果强烈依赖于初值, 且容易限于局部最优。运用遗传算法来解决费托合成反应详细动力学模型的参数优化问题是一种全新的尝试, 通过系统的实验获得了三组比较满意的参数估算结果, 证明遗传算法用于解决该参数优化问题是适宜的。

关键词 费托合成 参数优化 遗传算法

Optimization of Parameters for FTS Kinetic Model by Genetic Algorithm

Han Rui feng, Zhang Yong kui[#]

(Xinzhou Teacher's University, Xinzhou 034000 [#]Computer Science Department, Shanxi University, Taiyuan 030006)

Abstract Detailed kinetic model is one of the most important basic research items for Fischer-Tropsch Synthesis(FTS). LM(Levenberg-Marquardt) algorithm is used a lot in estimating parameters of the kinetic model. However, as an unlimited algorithm, LM often makes an inaccurate conclusion because of parameters exceeding the limit. Its computation greatly depends on the initial point, and easily falls into non-global optima. It is a new attempt to apply Genetic Algorithm(GA) to the solutions of optimization problems of FTS parameters. The conclusion comes that GA can be applied to such problems, which having obtained three-comparatively-satisfying-group results of parameter-estimating through a number of systemic tests.

Key words Fischer-Tropsch synthesis, Parameter estimation, Genetic algorithm

遗传算法^[1]是模拟生物自然进化的计算机算法, 它模拟的是群体的集体进化行为, 其中群体中的每个个体表示问题搜索空间中的一个可行解。遗传算法是从任一初始的解群体出发, 通过群体中个体(基因)的遗传和变异, 从而有效地达到一种稳定优化状态的繁殖和选择的过程, 可使群体进化到搜索空间中越来越好的区域。它运用随机而非确定性的规则对一组而非一个点进行全局而非局部的搜索, 它仅利用目标函数而不要求其导数或其它附加限制, 它虽然在特定问题上效率也许不是最高, 但总体效率远高于传统随机算法, 是一种普遍适用于各种问题的简单而又有效的搜索方法。

在化学领域中, 遗传算法被成功地用于分子识别、设计和构造、构象搜索、结构优化、模

韩瑞峰 硕士, 讲师, 主要从事人工智能和遗传算法的研究。

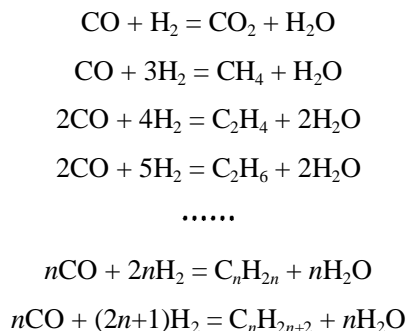
山西省高校科技研究开发项目(200358)

2003-04-02 收稿, 2003-11-28 接受

型选择、参数优化等领域。特别是许多化学反应动力学模型参数优化问题非常复杂, 很难用传统的优化方法来求解。一般做法是根据实验观测数据的约束, 建立一定的复杂化学反应的数学物理模型, 然后利用反演方法寻找模型的最优参数, 以推广应用于解决实际问题。本文以改进的实数编码遗传算法^[2]对费托合成反应动力学模型^[3]参数进行了优化, 以期对动力学模型的参数估算提供适当的数学工具。

1 动力学模型

费托合成(Fischer-Tropsch Synthesis, FTS)是煤或天然气经汽化/重整进行间接液化的重要过程。费托合成反应相当复杂, 产物包括从低碳数到高碳数的各种烃类、少量的醇和酯, 对于铁系催化剂还有水煤气变换反应发生。作为一种简化, 该反应体系的独立化学反应方程式可以写成:



一般取 $n = 50$, 这样共有 100 个独立化学反应方程, 相应就有 100 个反应速率表达式。

动力学实验在等温等压的固定床反应器内进行, 计算各组分摩尔流量的微分方程一般可写成:

$$\frac{dC_i}{dz} = \sum_{j=1}^m v_{i,j} r_j \quad i = 1, n$$

式中, C_i 为摩尔流量, $v_{i,j}$ 为计量系数, r_j 为反应速率, m 为独立反应个数, n 为组分个数。初始条件: $C_i = C_{i0}$ 在 $z=0$ 。实际计算时仅对 100 个独立组分的摩尔流量进行积分, 非独立组分的摩尔流量由计量关系得出。

本文针对中国科学院山西煤炭化学研究所开发的 Fe-Cu-K 催化剂进行动力学模型的参数估算, 采用的费托合成反应动力学模型为 FT1WG3^[3]。

费托合成反应的动力学参数可以分为两类: 活化能与置前因子。活化能允许的取值范围较小, 置前因子允许的取值范围可以在几到十几个数量级变化。如采用普通的线性空间, 无法实现对置前因子在不同数量级上的均匀搜索。为此笔者参考文献[4]的做法, 对置前因子作如下变换:

$$C_i = \exp(C_i^*)$$

用对 C_i^* 的搜索代替对 C_i 的搜索。

构造计算适应值的函数形式为:

$$F = \sum_{i=1}^{iexp} \sum_{j=1}^{item} (y_{i,j}^{cal} - y_{i,j}^{exp})^2$$

其中 $iexp$ 为实验观测组数, $item$ 为每组实验要比较的指标个数, $y_{i,j}^{cal}$ 为计算值, 是待估参数的函数, 需要通过对上面微分方程组的求解获得; $y_{i,j}^{exp}$ 为实验观测值。在本问题中: $iexp=32$, $item=12$ 。

常微分方程组求解采用标准的 Gear 方法。

概括起来, 这个问题是最小二乘参数估算问题, 待估参数为 14 个, 目标函数每一次求值包含 32 次对 100 维的常微分方程组的求解。

2 算法的选择与实施

传统的参数估算方法如 LM(Levenberg-Marquardt)最小二乘法^[5]属于无约束方法, 由于其本身的局限性和费托合成反应动力学模型的复杂性, 在计算中容易因参数越界而使计算失败, 计算结果强烈依赖于初值, 且容易限于局部最优。由于这些问题, 象费托合成这样的复杂动力学模型的参数估算, 使用 LM 算法时, 往往需要用各种各样的初值反复试探而耗时费力。经过对实验函数的大量优化比较^[6], 笔者拟采用改进的实数编码遗传算法^[2]进行参数估算, 并与传统算法的估算结果相比较。改进的实数编码遗传算法的伪码描述^[2]:

Procedure Genetic Algorithm

```
begin 初始化部分 {打开输入文件和输出文件, 从 gafit.dat 中读入观测数据}
call ga_options (); {从 g.in 中读入控制参数}
call ga_initialize (); {从 g_data.in 中读入维数及参数搜索范围}
it := 0; {it 为群体代数}
call ga_random (); {产生初始群体}
while ( it < itmax ) do {itmax 为预置最大迭代次数}
begin  it := it + 1; call calcmisfit (); {计算目标函数值}
call ga_misfit (); {寻找本代最优最差个体模型并完成选择和淘汰}
call summary (); {每代优化结果输出}
if ( it = itmax ) then {输出优化结果}      end
call ga_main (); {杂交和变异算子作用, 产生新群体}      end
endp
```

3 动力学参数回归实验

动力学参数估算的一个重要特点是: 求出的活化能必须符合物理意义, 如果活化能超出合理的范围, 即使对应的目标函数值更低, 也不是所求解。下面的遗传算法实验结果表明, 用遗传算法来进行费托合成反应动力学模型的参数估算是有效的, 从任意一个随机产生的初始群体出发, 经过 800 代的进化计算, 都可得到有效的结果(相对误差较小)。汇总实验结果如表 1。

表 1 三组控制参数分别进行动力学模型参数估算情况与 LM 算法估算情况对照表

Tab.1 the optimum results of kinetic model

动力学指标	LM 算法结果	条件 A	条件 B	条件 C
1	0.223	0.174	0.168	0.198
2	0.247	0.160	0.150	0.155
3	-0.018	-0.162	-0.166	0.289
4	-0.615	-0.137	-0.110	0.206
5	-0.200	-0.039	-0.037	0.311
6	-0.320	-0.212	-0.232	0.470
7	-0.524	-0.493	-0.507	0.523
8	-0.318	-0.211	-0.229	0.472
9	-0.248	-0.218	-0.226	0.355
10	-0.179	-0.015	-0.038	0.433
11	-0.220	-0.190	-0.189	0.337
12	-0.206	-0.002	0.014	0.277
时间	反复试探	56h 32min	56h 50min	65h 40min

(1)本实验采用的动力学模型、LM 算法的动力学模型参数估算结果以及 32 个实验点的实验值均由中国科学院山西煤炭化学研究所提供^[3]；表中所列时间为在同一计算机(Pentium III 933MHz)上的运行时间；

(2)条件 A 代表杂交率为 0.8，变异率为 0.007，群体规模为 90；条件 B 代表杂交率为 0.95，变异率为 0.01，群体规模为 90；条件 C 代表杂交率为 0.9，变异率为 0.02，群体规模为 120；

(3)表中给出的数据为 32 组实验数据所对应的各项优化指标的平均相对误差值；

(4)优化指标是指：1-CO；2-H₂；3-CO₂；4-H₂O；5-CH₄；6-C₂H₄；7-C₂H₆；8-C₃H₆；9-C₃H₈；10-C₄H₈；11-C₄H₁₀；12-C₅₊。其中指标 1、2、5 和 12 为重要指标。

(5)指标 1~11 为出口摩尔流量，指标 12 为出口质量流量。

从表中数据可以发现，无论采用哪一组控制参数，经过短短 800 代的进化计算，遗传算法的拟合误差均好于采用 LM 算法拟合的结果，对应的各项动力学指标都在合理的范围，估算参数的结果有效。

遗传算法取典型参数时，目标函数最小值随迭代次数变化图 1 所示。

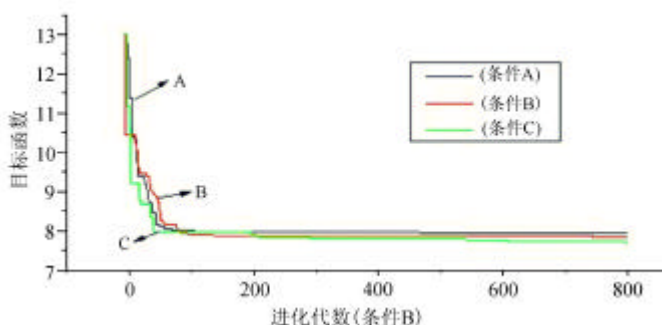


图 1 遗传算法收敛的稳定性

Fig.1 Robustness of genetic algorithm

从图 1 可以看出，控制参数的变化，并不影响遗传算法收敛的稳定性。从目标函数值来看，

条件 B 使目标函数的收敛值更小, 更符合数学要求。但上述三条曲线有一个共同点就是, 当进化到 100 代左右时, 目标函数值的改善变得十分缓慢, 效率低下。在实际应用时, 可在用遗传算法进化约 100 代后, 以所得结果为初始点进行局部搜索。

在条件 B 时, 群体收敛情况示意如图 2 所示。

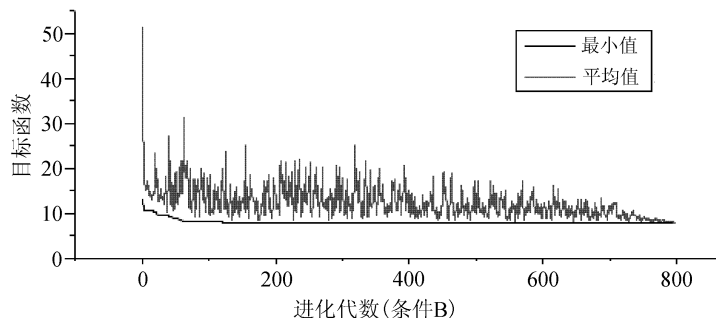


图 2 群体收敛示意图

Fig.2 Convergence progress of population

图 2 用同一进化代各个体的目标函数平均值随进化代数逼近目标函数最小值的程度来示意群体收敛性。从图 2 可以看出, 随着进化代数的增加, 目标函数平均值的波动越来越小, 波动表现了群体的多样性和在进化过程中杂交与变异的作用。波动幅度变小表现了遗传算法群体逼近最优点, 具有卓越的全局寻优能力。

群体内的每个个体都是解空间的点, 这些点的凝聚程度, 可用所有点到它们的中心点的距离的平均值来表示, 平均值越小表明群体中的点越集中。为此, 以多维空间中多个点的对应坐标的平均值为坐标的点定义为这些点的中点; 其中任一点到中点的距离定义为中点距离, 并定义群体收敛度为:

$$\text{群体收敛度} = 1 - \frac{\text{当前群体中心点距平均值}}{\text{初始群体中心点距平均值}}$$

在进化开始产生初始群体时, 其收敛度为 0; 当群体有效地收敛到全局最优点时, 其收敛度为 1。

条件 B 时, 群体收敛度示意如图 3 所示。

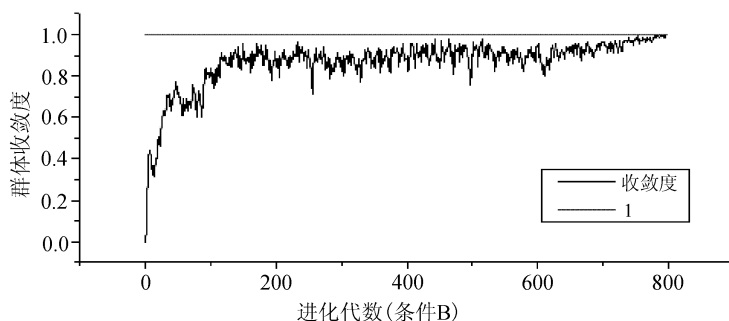


图 3 群体收敛示意图

Fig.2 Convergence progress of population

由图 3 可见, 随着进化代数的增加, 群体收敛度越来越接近 1, 这一点符合遗传算法群体

逼近最优点的思想;当进化代数足够大时,群体收敛度等于 1。收敛度曲线的波动表明在进化过程中受杂交和变异的影响,群体从极值点(可能是局部极值点)跳出,在更广泛空间寻优,表明了遗传算法的全局寻优能力。

4 结论

用遗传算法来解决费托合成反应动力学模型的参数回归问题是一种探索性的工作,笔者根据现有条件对费托合成反应动力学模型的参数进行了优化实验研究,解决了长期以来动力学参数难以准确估算的问题。研究实验表明,该设计的算法程序能够在较合适的时间内求得令人满意的参数值,而且其优化性能明显好于其它传统的如 LM 算法的优化结果,所得到的参数值更为合理,也更符合实际意义。

但遗传算法也有不如人意的地方,例如它的动态适应性差,且在控制参数的选取与群体规模的确定上,常因问题的领域空间不同而不同,准确的选择依赖于大量的实验,取决于个人经验。

参考文献

- [1] 刘 勇,康立山,陈毓屏. 非数值并行算法——遗传算法. 北京: 科学出版社, 2000.
- [2] 韩瑞峰, 张永奎. 计算机工程与应用, 2002, 38 (13): 78~80.
- [3] 王逸凝. 固定床费托合成动力学和反应器的模拟研究. 中国科学院山西煤炭化学研究所学位论文, 太原: 2001.
- [4] 韩瑞峰. 山西大学. 硕士学位论文, 太原: 2001.
- [5] 邓乃扬. 无约束最优化计算方法. 北京: 科学出版社, 1982, 272~295.
- [6] 韩瑞峰, 张永奎. 电脑开发与应用, 2002, 15(11): 4~5.
- [7] 玄光男, 程润伟. 遗传算法与工程设计. 北京: 科学出版社, 2000.