

УДК 517.977.5

DOI: 10.33184/bulletin-bsu-2020.4.19

УСТОЙЧИВОСТЬ ОПТИМАЛЬНЫХ РЕЖИМОВ КАТАЛИТИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ ПРИ МНОГОКРИТЕРИАЛЬНОЙ ОПТИМИЗАЦИИ

© К. Ф. Коледина^{1,2}

Институт нефтехимии и катализа УФИЦ РАН
Россия, Республика Башкортостан, 450075 г. Уфа, пр. Октября, 141.

Уфимский государственный нефтяной технический университет
Россия, Республика Башкортостан, 450062 г. Уфа, ул. Космонавтов, 1.

Тел.: +7 (347) 284 27 50.

Email: koledinakamila@mail.ru

Многокритериальная оптимизация условий проведения сложных каталитических реакций на основе кинетической модели является актуальной задачей. Однако, недостаточно только рассчитать все эффективные траектории, значения варьируемых параметров и критериев оптимальности. Для применения на практике рассчитанных режимов важным является информация о допустимом интервале изменения оптимальных режимов. В работе приведена математическая постановка задачи параметрического анализа устойчивости границы Парето и алгоритм решения. Для каталитического риформинга бензина решена задача многокритериальной оптимизации условий проведения на основе кинетической модели и рассчитан допустимый интервал изменения оптимальных значений температур на входе в три реактора.

Ключевые слова: устойчивость оптимального режима, граница Парето, многокритериальная оптимизация, каталитический риформинг, октановое число, эффективные траектории.

Введение

Необходимость исследования устойчивости задач оптимизации к возмущениям параметров вызвана целым рядом факторов, таких как неточность исходных данных, неадекватность моделей реальным процессам, погрешность численных методов, ошибки округления, потребность в разработке алгоритмов для решения «близких» задач и т.д. [1–3]. Нельзя корректно поставить и правильно решить произвольную оптимизационную задачу без исследования ее на устойчивость. Кроме того, для сложных каталитических процессов технологические режимные условия требуют определения допустимых интервалов значений параметров, обеспечивающих устойчивость рассчитанного решения с допустимой погрешностью.

В работе [1] исследуется общая постановка и решение задачи устойчивости многокритериальных траекторных задач. Исследуется тип устойчивости задачи к независимым возмущениям входных данных, при которых не появляются новые эффективные решения. Определена формула расчета радиуса устойчивости задачи, а также указаны необходимые и достаточные условия устойчивости [1]. Для задач химической кинетики при анализе устойчивости многокритериальной оптимизации необходимо определить радиус устойчивости по каждому параметру, с целью возможного изменения рассчитанных значений с заданной погрешностью.

Материалы и методы

Постановка задачи многокритериальной оптимизации (МКО) условий проведения каталитической реакции на основе кинетической модели имеет

следующий вид [4–5]. Пусть определен вектор варьируемых параметров $X=(x_1, x_2, x_3, x_4, \dots, x_m)$ в пространстве D_X , а набор из n критериев оптимальности представляет собой вектор-функцию $F(X)=(f_1(X), f_2(X), f_3(X), \dots, f_n(X))$, заданную в пространстве W , где $f_1(X), f_2(X), f_3(X), \dots, f_n(X)$ – частные критерии оптимальности. В качестве варьируемых параметров при исследовании химических реакций могут выступать: x_1 – температура реакции; x_2 – начальные концентрации реагентов; x_3 – время проведения реакции; x_4 – тип катализатора; x_5 – подача катализатора и т.д. Критерии оптимальности: выход целевого продукта, выход побочного продукта, конверсия, селективность, производительность, прибыль, рентабельность, зависящие от кинетической модели и цели конкретного процесса. Необходимо определить

$$\max_{X \in D_X} F(X) = F(A) = T_s^n(A), \quad (1)$$

где A – матрица оптимальных значений варьируемых параметров $A=(a_{ij}) \in R^{s \times m}$; m – число параметров, s – мощность множества решений задачи МКО; $T_s^n(A)$ – рассчитанные s значений n критериев оптимальности или s -эффективные траектории [1]. Решение задачи (1) представляет собой границу Парето.

В задачах МКО наряду с пространством решений W рассматривается критериальное пространство W' , представляющее собой прямое произведение критериев оптимальности. Тогда совокупность критериев оптимальности задает некоторое отображение $F(X) = (f_1(X), f_2(X), f_3(X), \dots, f_n(X))$, действующее из W в W' [6].

Совокупность критериев оптимальности называется полной, если она описывает все необходимые показатели для конкретной каталитической реакции и отражает все основные интересы и предпочтения лица, принимающего решение (ЛППР).

Множество $Y = F(X) = \{y | y = f_i(X), i = 1, \dots, n\}$ называют множеством достижимости значений критериев оптимальности.

Решение задачи МКО условий проведения каталитической реакции (1) в виде границы Парето обозначим как $Z_s^n(A)$. Тогда необходимо провести анализ устойчивости границы Парето оптимальных условий проведения каталитических процессов $Z_s^n(A)$ к малым возмущениям в параметрах на основе кинетической модели.

Устойчивое состояние равновесия системы по Ляпунову означает, что при достаточно малом отклонении от положения равновесия система никогда не уйдет далеко от особой точки [7]. Граница Парето $Z_s^n(A)$ устойчива в том случае, когда при малых независимых возмущениях элементов матрицы A значения множества s -эффективных траекторий отклонится от исходного состояния на некоторые малые величины.

По аналогии с [7], определение устойчивости границы Парето $Z_s^n(A)$: если $B = (b_i) \in R^m$ - вектор возмущений к A , всегда можно найти вектор $\Delta = (\delta_j) \in R^n$, что:

$$\forall b_i > 0 \exists \Delta: |T_s^j(A) - T_s^j(A+B)| \leq \delta_j, \quad (2)$$

где $i = 1, \dots, m; j = 1, \dots, n$.

Тогда радиус устойчивости границы Парето $Z_s^n(A)$ определяется как

$$\rho_s^j(A) = \begin{cases} \sup P_j(A), \text{ где } P(A) \neq \emptyset \\ 0, \text{ где } P(A) = \emptyset \end{cases}, \quad (3)$$

где $P_j(A) = \{B > 0 | |T_s^j(A) - T_s^j(A+B)| \leq \delta_j\}$.

Таким образом, граница Парето задачи $Z_s^n(A)$ устойчива тогда и только тогда, когда $\rho_s^j(A) > 0, j = 1, \dots, n$ [1]. Причем в зависимости от набора допустимых отклонений Δ , определяется различный радиус устойчивости по варьируемым параметрам.

Алгоритм анализа устойчивости границы Парето

Согласно определению устойчивости границы Парето условий проведения каталитических реакций на основе кинетической модели (1)–(3), алгоритм расчета радиуса устойчивости задачи приведен в виде псевдокода.

$Step_i \leftarrow$ шаг по варьируемым параметрам

$\Delta_i \leftarrow$ допустимые изменения по критериям оптимальности

$A \leftarrow$ матрица оптимальных значений варьируемых параметров (множество Парето).

$T_s^j(A) \leftarrow$ матрица оптимальных значений критериев (фронт Парето).

$Flag \leftarrow$ FALSE условие нарушения устойчивости.

$\varepsilon_i \leftarrow 0$ возмущения варьируемых параметров.

While not $Flag$

$\varepsilon_i = \varepsilon_i + Step_i$

For each признак $i=1, \dots, n$ варьируемых параметров

$B \leftarrow \varepsilon_i$

Рассчитать $T_s^j(A+B)$

If $|T_s^j(A) - T_s^j(A+B)| \leq \delta_j$ **then** $\rho_i \leftarrow \varepsilon_i$
else $Flag \leftarrow$ TRUE

End if

Next признак варьируемых параметров

Next по $Flag$

Результаты и их обсуждение

Объектом исследования является промышленный процесс каталитического риформинга бензина. Актуальной проблемой каталитического риформинга являются жесткие ограничения на конечный продукт после компаундирования компонентов в товарном парке по требованиям к физико-химическим и эксплуатационным показателям бензина класса «Евро 6». А именно, ограничения по объемной доле бензола (не более 1%) и ароматических углеводородов (не более 35%). Однако, основным назначением процесса каталитического риформинга является повышение октанового числа бензина, что достигается за счет ароматизации. Для решения проблем процесса каталитического риформинга поставлена и решена задача многокритериальной оптимизации условий проведения процесса одновременно по нескольким критериям на основе кинетической модели [8–9].

Реакторный блок процесса каталитического риформинга состоит из трех адиабатических реакторов, в каждый из которых поступает смесь, нагретая до необходимой температуры. Поэтому варьируемыми параметрами являются режимные условия: температуры на входе в ректора $T_j, j = 1, 2, 3$.

Для сложного промышленного процесса каталитического риформинга бензина характерны следующие критерии оптимальности [10]:

1) Повышение октанового числа риформата. В расчетах допускается аддитивность октановых чисел по исследовательскому методу (ONRM) компонентов смеси и используются усредненные значения октановых чисел смешения компонентов.

2) Выход целевого продукта – риформата (Yield_Rif). Физически данный показатель представляет долю продукта за вычетом газов крекинга.

3) Повышение октанового числа бензина происходит по большей части за счет образования ароматических углеводородов (аренов). Однако, в то-

варных бензинах класса Евро-5, Евро-6 содержание ароматических углеводородов и бензола в частности и не должно превышать 35 и 1% об. соответственно, что следует из экологических требований (Технический регламент №609 «О требованиях к выбросам автомобильной техникой, выпускаемой в обращение на территории Российской Федерации, вредных (загрязняющих) веществ» от 1 января 2016 г.). Экологические ограничения относятся к товарному бензину, а не непосредственно к целевому продукту риформинга риформату. Но они определяют долю риформата в составе товарного бензина. Поэтому для каталитического риформинга содержания ароматических углеводородов и бензола должны стремиться к минимуму (*Aromatics*).

Решение поставленной задачи многокритериальной оптимизации проводилось алгоритмом Парето-аппроксимации NSGA-II [11–13].

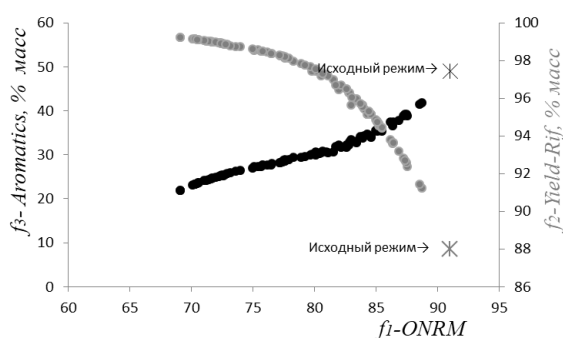


Рис.. Аппроксимация фронта Парето МКО-задачи каталитического риформинга бензина для критериев оптимальности: ONRM, выход ароматических углеводородов, выход риформата.

На рис. и в табл. приведено решение трехкритериальной задачи оптимизации температурного режима каталитического риформинга бензина, с критериями оптимальности: октановое число

ONRM, выход ароматических углеводородов *Aromatics*, выход риформата *Yield_Rif*. На рис. вместе с расчетными значениями приведен исходный экспериментальный режим. Решением являются значения трех температур на входе в реактора и, соответствующие им значения критериев оптимальности (табл., приведен некоторый набор значений). Все определенные значения являются оптимальными. Выбор конкретного температурного режима зависит от лица принимающего решение.

В табл. представлены температурные режимы реакторного блока и значения содержания ароматики, ONRM продукта и выход риформата, достигаемые при данных температурах [14]. В результате можно выделить режим, обеспечивающий снижение содержания суммы ароматических углеводородов на 10% с потерей октанового числа на 3 пункта и увеличение выхода риформата на 8% (табл., строка 10).

Решение поставленной МКО-задачи позволило определить температурный режим реакторного блока, понижающий выход бензола без существенной потери октанового числа и с увеличением выхода риформата.

Таким образом, исследование кинетики каталитического риформинга, влияния температурного режима на выход целевого продукта, позволяет модернизировать и улучшить технологический режим и добиться снижения количества бензола и ароматики в конечном продукте, при допустимом уменьшении октанового числа.

Для полученного решения МКО-задачи реакции каталитического риформинга бензина необходимо рассчитать радиус устойчивости, что позволило бы лицу, принимающему решение, оценить необходимые технические условия проведения процесса.

Таблица

Аппроксимация границы Парето МКО-задачи каталитического риформинга бензина

№	$x_1-T_1, ^\circ\text{C}$	$x_2-T_2, ^\circ\text{C}$	$x_3-T_3, ^\circ\text{C}$	$f_1 = \text{ONRM}$	$f_3 = \text{Aromatics, \% масс.}$	$f_2 = \text{Yield_Rif, \% масс.}$
1	400	400	400	69.1	22	99.2
2	417	418	409	71.1	24	99.0
3	415	439	428	74.0	26	98.7
4	472	458	427	78.9	29	97.8
5	479	452	437	80.1	30	97.6
6	486	492	404	82.9	33	95.6
7	438	465	480	84.9	35	94.8
8	441	483	472	85.1	35	94.8
9	448	494	480	87.2	39	92.8
10	434	479	499	89.0	44	91.2

При определении значений допустимых изменений рассчитанных траекторий Δ положим не более 2% изменение значений октанового числа (с учетом того, что бензин каталитического риформинга является одной из составляющих товарного бензина и недостаток в октановом числе восполняется высокооктановыми продуктами других процессов), не более 10% изменение по выходу ароматики и не более 5% изменения по выходу риформата: $\Delta = (\delta_1, \delta_2, \delta_3) = (0.02, 0.1, 0.05)$. Возмущения задаются для варьируемых параметров – температуры на входе в реактора: $B = (b_1, b_2, b_3)$. Радиус устойчивости определяется для каждого варьируемого параметра, согласно (3). Рассчитанным допустимым изменением температур на входе в три реактора является: $b_1 = b_2 = b_3 = 3^\circ\text{C}$.

Таким образом, для применения на практике рассчитанных оптимальных режимов для ЛПП важным является информация о допустимом интервале их изменения. Для процесса каталитического риформинга бензина решена задача МКО условий проведения на основе кинетической модели и рассчитан допустимый интервал изменения оптимальных значений температур на входе в реакторы, позволяющий получать значения октанового числа, выхода ароматических углеводородов и риформата в заданных пределах.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект №19-71-00006).

ЛИТЕРАТУРА

1. Бухтояров С. Е. Параметризация принципа оптимальности («от Парето до Слейтера») и устойчивость многокритериальных траекторных задач / С. Е. Бухтояров, В. А. Емеличев // Дискретн. анализ и исслед. опер. 2003. Т. 10. №2. С. 3–18.
2. Akhmadiev F. G., Gizzyatov R. F., Nazipov I. T. Mathematical modeling of kinetics and optimization of grain material separation processes on sieve classifiers // Lobachevskii Journal of Mathematics. 2020. Т. 41. №7. Pp. 1155–1161.
3. Gubaidullin D. A., Snigerev B. A. Mathematical modelling of gas flow with heavy solid particles based on eulerian approach // Lobachevskii Journal of Mathematics. 2019. Т. 40. №11. Pp. 1944–1949.
4. Koledina K. F., Koledin S. N., Karpenko A. P., Gubaydullin I. M., Vovdenko M. K. Multi-objective optimization of chemical reaction conditions based on a kinetic model // Journal of Mathematical Chemistry February . 2019. Vol. 57, I. 1. Pp. 484–493.
5. Koledina K. F., Koledin S. N., Nurislamova L. F., Gubaydullin I. M. Internal parallelism of multi-objective optimization and optimal control based on a compact kinetic model for the catalytic reaction of dimethyl carbonate with alcohols // In: Sokolinsky L., Zymbler M. (eds) Parallel Computational Technologies. PCT 2019. Communications in Computer and Information Science. V. 1063. Springer, Cham.- Pp. 242–255.
6. Лотов А. В., Рябиков А. И. Метод стартовой площадки в многоэкстремальных задачах многокритериальной оптимизации // Журнал вычислительной математики и математической физики. 2019. Т. 59. №12. С. 2111–2128.
7. Emelichev V. A., Girlich E., Nikulin Yu. V., Podkopaev D. P. Stability and regularization of vector problems of integer linear programming // Optimization. 2002. V. 51. No. 4. Pp. 645–676.
8. Zainullin R. Z., Koledina K. F., Akhmetov A. F., Gubaidullin I. M. Kinetics of the catalytic reforming of gasoline // Kinetics and Catalysis. 2017. Vol. 58. No. 3, Pp. 279–289.
9. Zaynullin R. Z., Koledina K. F., Gubaydullin I. M., Akhmetov A. F., Koledin S. N. Kinetic model of catalytic gasoline reforming with consideration for changes in the reaction volume and thermodynamic parameters // Kinetics and Catalysis. 2020. Vol. 61. No. 4. Pp. 613–622.
10. Zainullin R. Z., Zagoruiko A. N., Koledina K. F., Gubaidullin I. M., Faskhutdinova R. I. Multi-criterion optimization of a catalytic reforming reactor unit using a genetic algorithm // Catalysis in Industry. 2020. Vol. 12. No. 2. Pp. 133–140.
11. Deb K., Mohan M., Mishra S. Towards a quick computation of well-spread Pareto-optimal solutions // Evolutionary Multi-Criterion Optimization. Springer. 2003. Pp. 222–236.
12. Corne D., Jerram N., Knowles J., Oates M. GECCO 2001: Proceedings of the Genetic and Evolutionary Computation Conference. 2001. Pp. 283–290.
13. Srinivas N., Deb K. Multiobjective optimization using nondominated sorting in genetic algorithms // Evolutionary computation. 1994. No 2(3). Pp. 221–248.
14. Gubaydullin I., Koledina K., Koledin S., Zaynullin R. Catalytic reforming reactor section optimization based on a mathematical model accounting the reaction volume changes // OPCS 2019. IEEE. P. 58–63.

Поступила в редакцию 02.11.2020 г.

STABILITY OF OPTIMAL MODES OF CATALYTIC PROCESSES UNDER MULTI-CRITERIAL OPTIMIZATION

© K. F. Koledina

*Institute of Petrochemistry and Catalysis, Federal Research Center of RAS
141 Oktyabrya Avenue, 450075 Ufa, Republic of Bashkortostan, Russia.*

*Ufa State Petroleum Technological University
1 Kosmonavtov Street, 450062 Ufa, Republic of Bashkortostan, Russia.*

Phone: +7 (347) 284 27 50.

Email: koledinakamila@mail.ru

The multi-criterial optimization of the conditions for complex catalytic reactions based on the kinetic model is an urgent problem. However, it is not enough just to calculate all the effective trajectories, values of the variable parameters, and optimality criteria. For practical application of the calculated modes, it is important to have information on the permissible range of changes in optimal modes. For complex catalytic processes, technological operating conditions require the determination of the permissible ranges of parameter values that ensure the stability of the calculated solution with an acceptable error. The paper presents a mathematical formulation of the problem of parametric analysis of the stability of the Pareto frontier and a solution algorithm. For the catalytic reforming of gasoline, the problem of multi-criterial optimization of the conditions for carrying out on the basis of a kinetic model was solved. The solution of the posed problem of multi-criterial optimization made it possible to determine the temperature regime of the reactor block, which lowers the benzene yield without significant loss of octane number and with an increase in the reformat yield. The permissible range of variation of the optimal values of temperatures at the inlet to three reactors was calculated, which makes it possible to obtain the values of the octane number, the yield of aromatic hydrocarbons and reformat within the specified limits.

Keywords: stability of optimal regime, Pareto frontier, multi-criterial optimization, catalytic reforming, octane number, effective trajectories.

Published in Russian. Do not hesitate to contact us at bulletin_bsu@mail.ru if you need translation of the article.

REFERENCES

1. Bukhtoyarov S. E. Diskretn. analiz i issled. oper. 2003. Vol. 10. No. 2. Pp. 3–18.
2. Akhmadiev F. G., Gizzyatov R. F., Nazipov I. T. Lobachevskii Journal of Mathematics. 2020. Vol. 41. No. 7. Pp. 1155–1161.
3. Gubaidullin D. A., Snigirev B. A. Lobachevskii Journal of Mathematics. 2019. Vol. 40. No. 11. Pp. 1944–1949.
4. Koledina K. F., Koledin S. N., Karpenko A. P., Gubaydullin I. M., Vovdenko M. K. Journal of Mathematical Chemistry February . 2019. Vol. 57, I. 1. Pp. 484–493.
5. Koledina K. F., Koledin S. N., Nurislamova L. F., Gubaydullin I. M. In: Sokolinsky L., Zymbler M. (eds) Parallel Computational Technologies. PCT 2019. Communications in Computer and Information Science. Vol. 1063. Springer, Cham. - Pp. 242–255.
6. Lotov A. V., Ryabikov A. I. Zhurnal vychislitel'noi matematiki i matematicheskoi fiziki. 2019. Vol. 59. No. 12. Pp. 2111–2128.
7. Emelichev V. A., Girlich E., Nikulin Yu. V., Podkopaev D. P. Optimization. 2002. Vol. 51. No. 4. Pp. 645–676.
8. Zainullin R. Z., Koledina K. F., Akhmetov A. F., Gubaidullin I. M. Kinetics and Catalysis. 2017. Vol. 58. No. 3, Pp. 279–289.
9. Zaynullin R. Z., Koledina K. F., Gubaydullin I. M., Akhmetov A. F., Koledin S. N. Kinetics and Catalysis. 2020. Vol. 61. No. 4. Pp. 613–622.
10. Zainullin R. Z., Zagoruiko A. N., Koledina K. F., Gubaidullin I. M., Faskhutdinova R. I. Catalysis in Industry. 2020. Vol. 12. No. 2. Pp. 133–140.
11. Deb K., Mohan M., Mishra S. Evolutionary Multi-Criterion Optimization. Springer. 2003. Pp. 222–236.
12. Corne D., Jerram N., Knowles J., Oates M. GECCO 2001: Proceedings of the Genetic and Evolutionary Computation Conference. 2001. Pp. 283–290.
13. Srinivas N., Deb K. Evolutionary computation. 1994. No 2(3). Pp. 221–248.
14. Gubaydullin I., Koledina K., Koledin S., Zaynullin R. OPCS 2019. IEEE. Pp. 58–63.

Received 02.11.2020.