

神经网络及遗传算法 在催化剂设计中的应用

韩晓霞*, 赵超凡

(太原理工大学电气与动力工程学院, 山西 太原 030024)

摘要:结合神经网络、遗传算法及带精英策略的非支配排序遗传算法(NSGA-II)的基本原理和特点,综述了其在催化剂设计中的应用步骤和应用实例,对快速高效开发新催化剂有借鉴作用。

关键词:催化剂设计;神经网络;遗传算法;NSGA-II

中图分类号:TQ015.9;TP391.9

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2018)08-0213-04

DOI:10.16606/j.cnki.issn 0253-4320.2018.08.047

Application of artificial neural network and genetic algorithm in catalyst design

HAN Xiao-xia*, ZHAO Chao-fan

(College of Electrical and Power Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

Abstract: In view of the fundamental principles and characteristics of artificial neural network, genetic algorithm, non-dominated sorting genetic algorithm-II (NSGA-II) attached with elite strategy, their application methods and practical examples in designing and optimizing catalysts are reviewed, which can give references for developing novel catalyst fast and efficiently.

Key words: catalyst design; neural network; genetic algorithm; NSGA-II

催化剂与人们的生产生活密切相关,是现代工业发展和城市生活水平提高的关键。据估计,60%以上的化学品生产和90%以上的化学工艺采用催化过程。高效催化剂有巨大的经济效益,催化过程的资本密集程度低,成本低,生产出纯度更高的产品和较少的副产品。然而,新催化剂的发现是一个艰巨且不可预测的不断试错的过程,实验及研发周期长。在全球竞争日益激烈的环境下,这一水平的生产率已不再适应于现代工业的需求。

为了应付这种挑战,研究者将在药物研究中发展成熟的组合化学技术应用到催化领域,形成组合催化技术用于快速评价及开发高效催化剂。计算机与信息科学技术的发展与引入是确保组合催化技术能够快速、准确、高效筛选催化剂的关键。其中,神经网络(artificial neural network, ANN)和遗传算法(genetic algorithm, GA)分别应用于催化剂设计的建模与优化,技术成熟且使用广泛,是组合催化中的经典方法。

1 神经网络——催化剂构效关系的建模工具

1.1 神经网络的应用概述

1.1.1 传统催化剂设计存在的问题

催化剂的设计是一个非常复杂的问题。传统的催化剂开发方法将催化剂配方各种因素分为不同水平,各因素的不同水平完全组合进行实验。将得到的实验结果进行分析比较,选出具有最优性能的催化剂。尽管其对催化剂工业的发展起到了很大的作用,但以下2方面的原因限制了催化剂的开发效率。

(1)传统的催化剂设计往往依赖于以前的经验建立机理模型,需要人们对反应机理有着比较清晰和全面的认识。而催化反应是一个非常复杂的表面化学现象,具有很高的复杂性,催化剂的作用还没有完全弄清楚,难以用现有的数学理论求解。另外,机理建模的建立常常以某些假设为前提,对实际情况进行简化,从而存在一定的误差,导致其适用范围受

收稿日期:2018-01-02;修回日期:2018-06-05

基金项目:国家自然科学基金项目(21606159)

作者简介:韩晓霞(1976-),女,博士,副教授,研究方向为复杂系统建模与优化,通讯联系人,hanxiaoxia@tyut.edu.cn。

到限制。

(2) 当催化剂配方的因素数或水平数较多时, 组合的实验次数急剧增大。为了克服这个问题, 均匀设计法和正交设计法被研究者引入实验设计, 挑选有代表性组合进行实验获取数据, 并建立数学模型加以认识, 或提供线索, 以使用较小的工作量和较少的盲目性发现潜在的催化剂。但是对于催化剂非线性复杂系统, 所建的数学模型较为粗糙, 通过该模型难以找到真正的最优解。

1.1.2 神经网络辅助催化剂设计

随着计算机与信息处理能力的提高, 研究者致力于将人工智能的理论及技术应用用于催化过程的建模, 以便设计和开发新的催化剂^[1]。其中, 神经网络是最常用的计算机辅助催化剂设计方法。

神经网络不是直接反映催化剂各组分及其性能间的相互作用, 而是通过多层次关联, 采用非线性隐含式作用函数更客观地建立催化剂组分与催化性能间的关系。神经网络建模是一个“黑箱”过程, 避开了烦琐的催化机理, 自动找出输入输出数据之间的关系, 为催化剂的设计开辟了一条新道路。

1.2 神经网络的应用实例

1.2.1 反映催化剂组分间的协同交互作用

多组分催化剂中, 各组分对催化性能交互影响, 本质上是其物理化学性质对催化性能的影响。对于这种复杂的非线性问题, 神经网络能够客观地反映各组分或物理化学性质间的协同交互作用, 有助于研究物理化学性质对催化性能的影响。Panahi 等^[2]应用多层感知器神经网络模拟 NH_3 -NO-SCR 过程中负载催化剂的组成-活性关系, 揭示了过渡金属的电负性和电离能对催化性能有较大的影响。

1.2.2 模拟部分人工实验

神经网络非线性拟合能力强, 对不完整和有噪声的数据也可以进行有效地计算。神经网络的这种特点应用于催化剂的设计, 可以建立比较准确的模型, 代替部分实验, 减少人工实验的数量。Omata^[3]使用 12 组催化剂活性数据通过径向基神经网络发现了具有更好催化性能的助剂 Re。

1.2.3 结合优化算法寻找最优配方

研究者往往利用神经网络强大的计算功能建模, 再结合优化方法优化寻找最优配方。Huang 等^[4]研究了一种用于甲烷氧化偶联的多组分催化剂的计算机辅助设计。其使用一种改进的 BP 神经

网络模拟催化剂组分与催化性能之间的关系, 并结合 SWIFT 优化算法发现最优催化剂。

2 遗传算法——催化剂最佳组成的搜索引擎

2.1 遗传算法的应用概述

2.1.1 神经网络与遗传算法的结合(ANN-GA)

神经网络不是优化算法, 其本身无法找到最优的催化剂配方。此时, 需选择合适的优化算法, 将神经网络建立的催化剂组分与性能间的定量化函数关系作为催化剂配方优化计算的目标函数, 进行优化计算, 寻找最优的催化剂配方。遗传算法在催化剂优化中展现了强大的能力, 常常与神经网络结合应用于催化剂设计。遗传算法模拟生物进化时所遵循的自然法则“优胜劣汰”, 使搜索不断靠近最有希望的区域。此外, 遗传算法对整个空间进行搜索, 寻找全局最优解, 在催化剂的优化筛选中不易陷入局部最优解。

2.1.2 应用步骤

遗传算法包括 3 个步骤: 初始化, 适应度评价, 使用遗传算子“选择”、“交叉”、“变异”生成新个体。初始化将催化剂配方编码为遗传空间的基因型串结构数据——染色体, 并随机产生 N 个染色体作为初始种群用于迭代搜索。编码时, 需考量目标催化剂的特性, 将催化剂配方、制备方法及其活化尽可能地编码在序列中。适应度评价是计算个体的适应度值并来度量种群中的个体优劣。适值大的个体适应能力强, 在生成新个体的过程中被选中机会较多。优化催化剂的迭代过程中, 根据个体的适应度选择前一代最佳催化剂, 通过交叉(前一代的 2 种催化剂组分之间的交换), 定性突变(一种或多种化学元素或化合物被其他化合物替代), 定量突变(一种或多种化合物的浓度改变)产生新的催化剂。

神经网络结合遗传算法设计并寻找最优催化剂, 这种方法充分利用了神经网络的非线性拟合能力和遗传算法的非线性寻优能力。算法流程如图 1 所示。

2.2 ANN-GA 的应用实例

2.2.1 特点与优势

神经网络结合遗传算法应用于催化剂设计, 利用神经网络强大的非线性拟合能力建模催化剂构效关系, 将其作为遗传算法的适应度评价函数, 再利用遗传算法的全局寻优能力筛选最优催化剂。

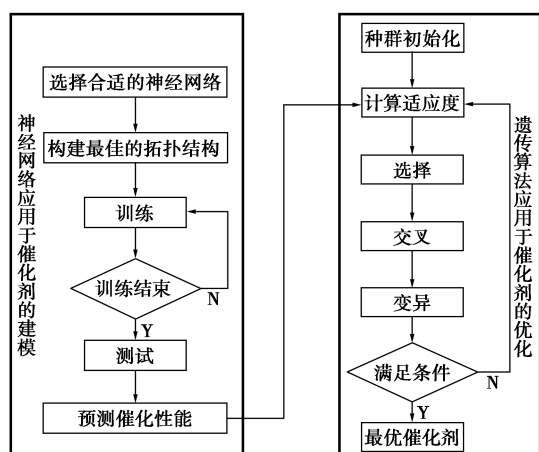


图1 ANN-GA 催化剂设计流程图

Umegaki 等^[5]对比无神经网络辅助的遗传算法,发现神经网络辅助遗传算法优化设计后的催化剂具有更高的活性,验证了该方法的可行性。

2.2.2 应用实例

神经网络和遗传算法结合对已有的实验数据进行分析,通用性强,已应用于各类催化剂的设计。Watanabe 等^[6]通过 ANN 学习与训练,用 GA 进行优化,得到活性比工业催化剂高很多的甲醇合成催化剂。Niaei 等^[7]采用神经网络辅助设计甲醇制汽油改性 H-ZSM-5 催化剂,通过混合遗传算法成功制得高汽油产率的催化剂。大量研究结果证实,ANN-GA 协同优化算法确实在催化剂开发中有明显优势与精度,在催化剂筛选与开发领域中俨然成为研究热点。

3 带精英策略的非支配排序遗传算法 (NSGA-II) —— 高效的多目标优化策略

3.1 NSGA-II 的应用概述

3.1.1 发展历程

传统的遗传算法应用于催化剂设计并取得了一定的成果。但对多目标优化问题,遗传算法只能优化单个目标,而催化剂的优化往往包括活性、选择性、寿命等多个性能指标。针对多目标问题,一种常用的优化方法是设法将多个目标整合为一个目标函数,再对其进行优化。这种方法的可行性不高,主要由以下原因造成:各目标量纲不一致,无法统一;加权值分配时具有主观性,形成的拓扑结构比较复杂;优化得到的是各目标的加权和,且只有 1 个解,无法为多目标问题提供多套可选择的方案。

为克服这些问题,Deb 等^[8]对遗传算法进行改

进,提出了用于多目标优化的二代非支配排序遗传算法(non-dominated sorting genetic algorithm II, NSGA-II)。NSGA-II 对多个目标同时进行优化,得到的是一个解的集合。对于这个解集中的任意一个解,不可能在某一个或几个目标没有受损的情况下,其他目标得到进一步的优化。这个解集就是所谓的非劣最优解集,也称为 Pareto 最优解集^[9]。NSGA-II 针对多目标优化问题,优化目标个数不受限制,解集的收敛性好,引入了精英策略,是目前最流行的一种多目标优化算法。

3.1.2 应用步骤

NSGA-II 在遗传算法的基础上提出了快速非支配排序法,拥挤度计算,引入了精英策略,其遗传算子“选择”、“交叉”、“变异”没有变化。

快速非支配排序法通过对种群进行分层,使搜索快速指向最有希望的区域。分层的依据是种群个体的非劣解水平,不断寻找非支配解集并依次存入非支配层 F_1, F_2, \dots ,直到种群中所有个体均存入非支配层。拥挤度表示种群中给定点的周围个体的密度。通过优先选择拥挤度距离较大的个体,可使计算结果在目标空间较均匀地分布,以维持种群的多样性。精英策略的目的是避免父代种群中的优良个体在进化时丢失,确保其进入子代。

针对催化剂配方的多目标优化问题,往往先建立多输入多输出的神经网络预测模型;将训练好的神经网络模型作为 NSGA-II 算法中适应度函数评价模型,用于预测具有最优催化性能的催化剂样本,从而生成第二代催化剂库。如此反复,协同优选出全局最优催化剂,流程如图 2 所示。

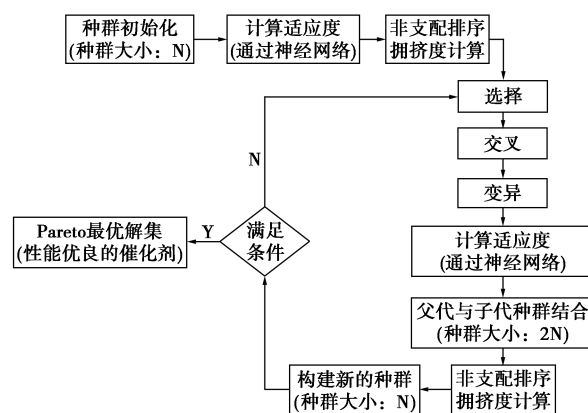


图2 ANN-NSGA-II 优化催化剂流程

3.2 NSGA-II 的应用实例

3.2.1 解决多目标优化问题

Ripon 等^[10]对 NPGA、MOGA、SPEA、VEGA、HL-

GA、PAES 和 NSGA-Ⅱ 等多目标进化算法进行比较,发现在多数情况下,NSGA-Ⅱ 得到最优的 Pareto 最优解。对于多目标优化问题,利用 ANN 的非线性拟合能力结合 NSGA-Ⅱ 的多目标寻优能力,是一种快速且实用的方法。Huang 等^[11]通过遗传算法优化的神经网络建模作为 NSGA-Ⅱ 的适应度函数,实现了出水水质和沼气流量之间的最佳平衡。Yu 等^[12]通过 ANN-NSGA-Ⅱ 有效地降低了燃煤锅炉的 NO_x 排放量和总热损失。

3.2.2 催化剂的设计与优化

工业催化剂考量的是催化剂的综合性能,往往需要同时对多个目标进行优化和权衡,因此,研究者将 ANN-NSGA-Ⅱ 应用在催化领域的多目标问题。Askati 等^[13]运用 ANN-NSGA-Ⅱ 优化 MTO 催化剂 SAPO-34 的制备,得到一系列转化率、产率和寿命都满足要求的催化剂。Furtuna 等^[14]借助一种优化的前馈神经网络,通过 NSGA-Ⅱ 计算优化出合成过程中最适宜的反应温度、反应时间、催化剂的使用量等参数条件。

4 结语

神经网络用于催化剂复杂非线性配方的建模,避开了复杂的催化机理,通用性强,仿真精度较高,甚至可以替代真实实验。将该模型作为遗传算法的适应度函数,对配方进行优胜劣汰,不断逼近最优解,从而得到优化的催化剂配方。这种方法针对单一性能指标的催化剂设计具有巨大潜力。然而工业催化剂往往有多个性能指标,NSGA-Ⅱ 拥有优化目标个数任选,非劣最优解分布均匀等特点,对催化剂的配方优化中的多目标问题有实用意义。通过神经网络结合 NSGA-Ⅱ 设计并优化催化剂配方,可以有效地避免大量人工实验及数据分析,提高效率,该应用对催化剂的制备以及工业生产具有重要的指导作用。

参考文献

- [1] 吴步军. 催化剂计算机辅助设计与优化[J]. 化学工程与装备, 2015, (3): 4-7.
- [2] Panahi P N, Niaei A, Tseng H H, *et al.* Modeling of catalyst composition-activity relationship of supported catalysts in NH₃-NO-SCR process using artificial neural network[J]. *Neural Computing and Applications*, 2015, 26(7): 1515-1523.
- [3] Omata K. Screening of supports and additives for heteropoly acid catalyst for Friedel-Crafts reaction by means of High-Throughput screening and data mining[J]. *Journal of the Japan Petroleum Institute*, 2011, 54: 114-118.
- [4] Huang K, Chen F Q, Lu D W. Artificial neural network aided design of a multi-component catalyst for methane oxidative coupling[J]. *Applied Catalysis A: General*, 2001, 219(1/2): 61-68.
- [5] Umegaki T, Watanabe Y, Nukui N, *et al.* Optimization of catalyst for methanol synthesis by a combinatorial approach using a parallel activity test and genetic algorithm assisted by a neural network[J]. *Energy & Fuels*, 2003, 17(4): 850-856.
- [6] Watanabe Y, Umegaki T, Hashimoto M, *et al.* Optimization of Cu oxide catalysts for methanol synthesis by combinatorial tools using 96 well microplates, artificial neural network and genetic algorithm[J]. *Catalysis Today*, 2004, 89: 455-464.
- [7] Niaei A, Badiki T M, Nabavi S R, *et al.* Neuro-genetic aided design of modified H-ZSM-5 catalyst for catalytic conversion of methanol to gasoline range hydrocarbons[J]. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 2013, 44(2): 247-256.
- [8] Deb K, Agrawal S, Pratap A, *et al.* A fast elitist non-dominated sorting genetic algorithm for multi-objective optimization: NSGA-Ⅱ [C]. In: *Proceedings of International Conference on Parallel Problem Solving From Nature*. Springer-Verlag, 2000: 849-858.
- [9] 张连文, 夏人伟. Pareto 最优解及其优化算法[J]. *北京航空航天大学学报*, 1997, 23(2): 206-211.
- [10] Ripon K S N, Kwong S, Man K F. A real-coding jumping gene genetic algorithm (RJGGA) for multiobjective optimization[J]. *Information Sciences*, 2007, 177(2): 632-654.
- [11] Huang M, Han W, Wan J, *et al.* Multi-objective optimisation for design and operation of anaerobic digestion using GA-ANN and NSGA-Ⅱ [J]. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 2016, 91(1): 226-233.
- [12] Yu T, Zhu H, Peng C. Multi-objective optimization of a coal-fired boiler combustion based on NSGA-Ⅱ algorithm[J]. *Journal of Networks*, 2013, 8(6): 1300-1306.
- [13] Askati S, Halladj R, Azarhoosh M J. Modeling and optimization of catalytic performance of SAPO-34 nanocatalysts synthesized sonochemically using a new hybrid of non-dominated sorting genetic algorithm-Ⅱ based artificial neural networks (NSGA-Ⅱ-ANN) [J]. *RSC Advances*, 2015, 5(65): 52788-52800.
- [14] Furtuna R, Curteanu S, Leon F. An elitist non-dominated sorting genetic algorithm enhanced with a neural network applied to the multi-objective optimization of a polysiloxane synthesis process[J]. *Engineering Applications of Artificial Intelligence*, 2011, 24(5): 772-785. ■