

ОПТИМІЗАЦІЯ ПАРАМЕТРІВ ПРОЦЕСУ ФЕРМЕНТАТИВНОГО ГЛІЦЕРОЛІЗУ ЖИРІВ КОМБІНУВАННЯМ МЕТОДІВ ГЕНЕТИЧНИХ АЛГОРИТМІВ І НЕЙРОННИХ МЕРЕЖ

В теперішній час актуальним напрямом розвитку олійно-жирової галузі є випуск продуктів функціонального призначення. Продукти називають «функціональними», якщо вони містять нутрієнти, що спрямовано позитивно впливають на здоров'я людини та перешкоджають виникненню різноманітних захворювань [1]. Перспективним напрямом у цій сфері є олія, збагачена діацилгліцеридами. Встановлено, що при прийомі діацилгліцеринової олії відбувається зниження ресинтезу триацилгліцеринів в епітелії кишечника та їх транспорту з кишечника в печінку. Вказана олія перешкоджає розвитку жирової інфільтрації печінки, а також дозволяє запобігти накопиченню жирової маси та попередити розвиток тригліцеридемії та холестеринемії [2].

Технологію отримання олії, збагаченої діацилгліцеридами, методом ферментативного гліцеролізу жирів розроблено та удосконалюється в Національному технічному університеті «ХПІ» [3,4].

Раніше проведені нами дослідження з вивчення кінетики і механізму ферментативного гліцеролізу жирів показали, що протікання цього процесу визначається чотирма основними факторами: співвідношенням вихідних реагентів – триацилгліцеринів (ТАГ) і гліцерину, кількістю ферменту, температурою та часом [5,6]. Встановлено, що зсув від оптимального співвідношення субстратів убік збільшення вмісту гліцерину веде до надлишкового утворення небажаних побічних продуктів – моноацилгліцеринів, а убік збільшення вмісту у вихідній суміші триацилгліцеринів – до зменшення виходу цільового продукту за рахунок зниження ступеня перетворення ТАГ. Ферменти, що використовуються, є досить дорогими препаратами, тому їх кількість бажано мінімізувати, при цьому забезпечуючи протікання ферментативних процесів з максимальним виходом продуктів реакції. Вказаний процес є ендотермічним, тобто вимагає підведення тепла. У той же час за межею температури стабільності позитивний ефект підвищення температури внаслідок білкової природи ферменту тією чи іншою мірою компенсується негативним ефектом теплової денатурації. Точка повної компенсації є оптимальною температурою для дії ферменту. Оптимум часу протікання процесу обумовлюється з однієї сторони забезпеченням максимально можливого в заданих умовах виходу діацилгліцеринів, з іншого боку – мінімізацією утворення побічних продуктів.

Тому метою представленої роботи є встановлення оптимальних параметрів ферментативного гліцеролізу жирів з використанням як критерія оптимізації максимального виходу діацилгліцеринів.

У якості модельних триацилгліцеринів (ТАГ) було обрано соняшникову олію, яка у своєму складі містить найпоширеніші жирні кислоти [7]. Модельні суміші складались з соняшникової олії та гліцерину у мольних співвідношеннях від 1:5 до 5:1. Реакцію каталізували за допомогою ферментного препарату Novozym 435 («Novozymes», Данія). Кількість біокаталізатора – від 2 % до 20 % мас. по відношенню до маси реакційної суміші. Процес проводили при температурах від 30 °C до 70 °C при постійному перемішуванні під шаром азоту. Час реакції варіювали від 60 до 300 хвилин. У визначені проміжки часу відбирались проби, ліпідний склад яких аналізувався методом високотемпературної газорідинної хроматографії у відповідності із AOCS Official Method Cd 11b-91 [8]. Використовувався хроматограф Shimadzu GC-2010 Gas Chromatography (Shimadzu Corporation), оснащений полум'яно-іонізаційним детектором (ПІД). Колонка HP-5, капілярна; її геометричні параметри: довжина 30 м, 0,25 мм внутрішній діаметр, 0,25 мкм товщина нерухомої фази. Стаціонарна фаза 5 % діфеніл – 95 % диметилполісилоксан. Температурна програма 80 °C (0 хв.), 10 °C/хв. до 350 °C (15 хв.). Температура інжектора – 320 °C, температура детектора – 350 °C. Газ-носіє – гелій. Швидкість газу-носія 3 см³/хв. Витрата повітря для ПІД – 300 см³/хв., витрата водню для ПІД – 30 см³/хв.

Отримані експериментальні дані (середнє значення двох паралельних досліджень) використовувались в якості вихідних для моделювання та оптимізації параметрів процесу ферментативного гліцеролізу.

Донедавна одним з основних підходів, який використовувався при оптимізації параметрів процесів у хімічній технології, було проведення повнофакторного експерименту з побудовою функції відклику, яка знаходилась шляхом апроксимації наявних експериментальних даних і мала наступний вигляд:

$$\hat{y}(x, a) = a_0 + \sum_{l=1}^n a_l x_l + \sum_{k=1}^n a_k x_k^2 + \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n a_{ij} x_i x_j, \quad (1)$$

де $x \in R^n$ – вектор змінних, a – вектор параметрів.

Головною проблемою при знаходженні функції відклику є визначення невідомих значень вектора параметрів a , яка може бути вирішена шляхом застосування різних алгоритмів регресійного аналізу або алгоритмів оптимізації (мінімізації) функціонала відхилю (2):

$$J(x) = \sum_{i=0}^m \|y_i - \hat{y}(x, a)\|^2, \quad (2)$$

де m – кількість експериментальних даних y .

Крім того, рішення даної задачі ускладнюється тим фактом, що навіть при досить невеликій розмірності вектора змінних x утворюється дуже велика кількість елементів вектора параметрів a . Зокрема, для процесу ферментативного гліцеролізу вектор змінних має розмірність 4, а вектор параметрів – 15. Таким чином, розглянутий метод не може повною мірою та з достатньою точністю описувати факторний простір експерименту.

Одним із сучасних підходів до завдання апроксимації функцій багатьох змінних складної або невідомої структури, до яких належить й досліджувана нами, є використання штучних нейронних мереж [9–11]. Головною особливістю такого підходу є відхід від необхідності обчислення значень параметрів апроксимуючої функції до можливості одержання безпосереднього значення досліджуваної величини в заданій точці простору вектора змінних x .

Штучні нейронні мережі (ШНМ) – математичні моделі, а також їх програмні або апаратні реалізації, побудовані за принципом організації та функціонування біологічних нейронних мереж. ШНМ являють собою систему з'єднаних і взаємодіючих простих процесорів (штучних нейронів). Зазначені мережі не програмуються у звичному змісті цього слова, вони навчаються. Можливість навчання – одне з головних переваг нейронних мереж перед традиційними алгоритмами. Технічно навчання полягає в знаходженні коефіцієнтів зв'язків між нейронами. У процесі навчання нейронна мережа здатна виявляти складні залежності між вхідними даними й вихідними, а також виконувати узагальнення. Це означає, що у випадку успішного навчання мережа зможе повернути правильний результат на підставі даних, які були відсутні в навчальній вибірці.

Попереднє моделювання процесу ферментативного гліцеролізу полягало у визначенні структури мережі, яке виконувалося шляхом проведення ряду обчислювальних експериментів з різними параметрами топології – кількість шарів, кількість нейронів у шарі, активаційна функція та інші. У результаті для апроксимації експериментальних даних нами була побудована тришарова мережа прямої передачі сигналу з 21 і 9 нейронами в першому й другому (схованих) шарах відповідно, і 1 нейроном у третьому (вихідному) шарі. Структура розробленої мережі представлена на рис. 1.

У якості функції активації схованих шарів і вихідного шару була обрана гіперболічна тангенціальна функція. Як функцію оцінки якості навчання був використаний комбінований критерій якості. У якості алгоритму адаптації та навчання – алгоритм Левенберга–Макрквадта. Кількість епох навчання – 100. Точність – 0,0001.

Програмна реалізація апарата штучних нейронних систем була виконана з використанням Neural Network Toolbox середовища MATLAB 7 (The Mathworks, Inc.).

Дані раніше проведених експериментів по ферментативному гліцеролізу жирів використовувалися для тренування та верифікації штучної нейронної мережі. Обсяг навчальної та верифікаційної вибірок дорівнював відповідно 105 та 20 вимірювань. Їх структура та значення представлені відповідно в таблицях 1 і 2. Для більш якісної роботи алгоритмів тренування нейронної мережі вихідні дані масштабувалися в діапазон $[-1;1]$ за виразом (3):

$$y = \frac{(y_{\max} - y_{\min}) \cdot (x - x_{\min})}{x_{\max} - x_{\min}} + y_{\min}, \quad (3)$$

де y – відмасштабовані дані; x – вихідні дані, x_{\min} та x_{\max} – мінімальне та максимальне значення вихідних даних; y_{\min} та y_{\max} – мінімальне та максимальне значення нового діапазону.

Дані, наведені в табл. 1 і 2, свідчать про адекватність нейронної мережі експериментальним даним. Середнє значення абсолютного відхилення модельних даних від експериментальних у навчальній вибірці склало 1,7 %, а у верифікаційній – 2,4 %.

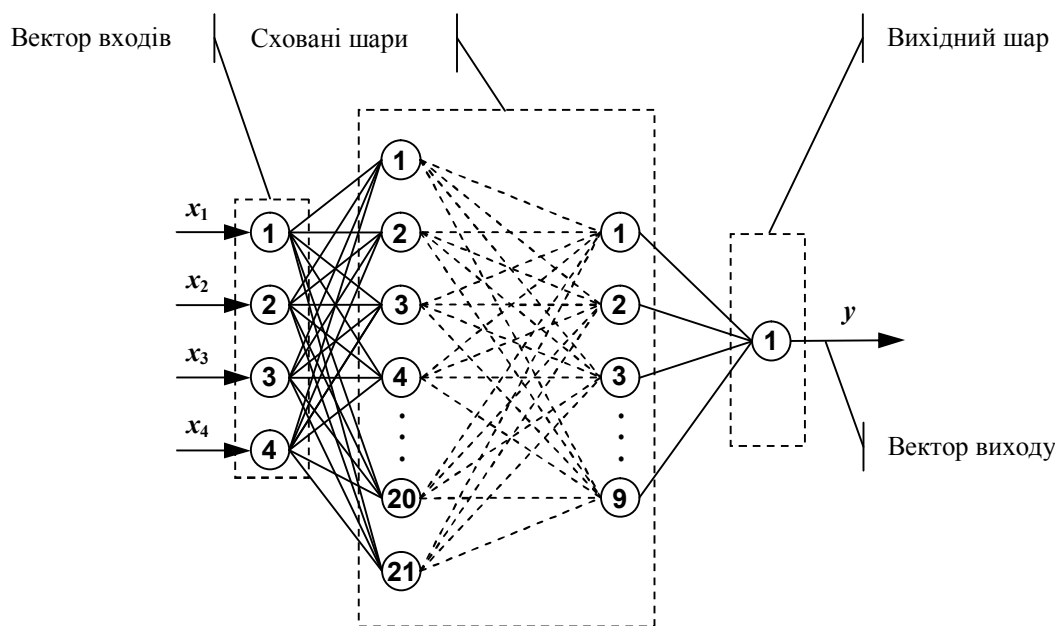


Рисунок 1 – Схема тришарової мережі прямої передачі сигналу

Таблиця 1 – Фрагмент навчальної вибірки

ТАГ:Гл	Кількість ферменту, % мас.	Температура, °C	Час, хв.	Вміст ДАГ, % мас.		Абсолютне відхилення, %
				Експеримент	Модель	
x_1	x_2	x_3	x_4	y		
0,2	10	30	90	5,20	5,40	3,8 %
0,2	10	50	90	10,18	10,13	0,5 %
0,2	10	70	90	20,30	20,41	0,5 %
1	2	30	120	6,80	6,72	1,2 %
1	2	30	180	12,80	13,10	2,3 %
1	2	30	240	18,70	19,20	2,7 %
1	2	30	300	20,50	19,82	3,3 %
1	2	40	90	4,97	5,14	3,4 %
1	2	60	90	9,30	9,05	2,7 %
1	10	50	60	28,40	28,79	1,4 %
1	10	50	90	37,92	37,26	1,7 %
1	10	50	150	45,74	47,30	3,4 %
1	10	50	210	50,15	48,90	2,5 %
1	10	60	90	46,32	47,62	2,8 %
1	10	60	120	50,68	49,57	2,2 %
1	10	60	150	48,21	48,53	0,7 %
1	10	70	60	47,44	47,02	0,9 %
1	10	70	120	50,10	49,73	0,7 %
1	10	70	180	42,20	42,50	0,7 %
1	10	70	240	42,00	41,56	1,0 %
1	10	70	300	41,90	41,98	0,2 %
1	15	70	90	49,40	49,65	0,5 %
1	20	70	60	51,70	49,93	3,4 %
5	10	30	90	2,45	2,54	3,7 %
5	10	50	90	5,80	5,90	1,7 %
5	10	70	90	11,60	11,57	0,3 %

Розроблена в результаті конструювання, навчання і верифікації багатопарова штучна нейронна мережа далі використовувалася для побудови цільової функції оптимізації ферментативного гліцеролізу методом генетичних алгоритмів.

Таблиця 2 – Верифікаційна вибірка

ТАГ:Гл	Кількість ферменту, % мас.	Температура, °С	Час, хв.	Вміст ДАГ, % мас.		Абсолютне відхилення, %
				Експеримент	Модель	
x_1	x_2	x_3	x_4	y		
0,2	10	40	90	7,35	7,15	2,7%
0,2	10	60	90	15,10	14,47	4,2%
1	2	30	90	3,16	3,30	4,4%
1	2	30	150	10,40	10,22	1,7%
1	2	30	210	15,30	15,25	0,3%
1	2	50	90	6,20	6,57	6,0%
1	2	70	90	12,20	12,05	1,2%
1	10	30	90	25,60	25,19	1,6%
1	10	50	120	43,07	44,06	2,3%
1	10	50	180	47,90	48,81	1,9%
1	10	50	240	48,20	47,77	0,9%
1	10	60	60	39,50	40,02	1,3%
1	10	60	180	44,85	46,85	4,5%
1	10	70	150	46,00	43,69	5,0%
1	10	70	210	42,12	41,23	2,1%
1	10	70	270	41,90	42,02	0,3%
1	10	90	90	37,30	38,01	1,9%
1	20	70	90	45,50	47,12	3,6%
5	10	40	90	4,12	4,18	1,5%
5	10	60	90	8,50	8,37	1,5%

Генетичні алгоритми – це процедури пошуку, засновані на механізмах природного добору і спадкування. У них використовується еволюційний принцип виживання найбільш пристосованих особин. Вказані алгоритми відрізняються від традиційних методів оптимізації декількома базовими елементами. Зокрема: обробляють не значення параметрів самої задачі, а їх закодовану форму; здійснюють пошук рішення, виходячи не з єдиної точки, а з їхньої деякої популяції; використовують тільки цільову функцію, а не її похідну або іншу додаткову інформацію; застосовують імовірнісні, а не детерміновані правила вибору [12–14]. Усі перераховані властивості обумовлюють той факт, що у цей час апарат генетичних алгоритмів є одним з найбільш сучасних і найкращих методів оптимізації складних поліпараметричних та багатоекстремальних функціональних залежностей, до яких належить процес ферментативного гліцеролізу.

Було обрано наступну схему функціонування апарата генетичних алгоритмів (рис. 2).

На рис. 2 пунктиром позначені основні операції генетичних алгоритмів, проведених над елітними елементами популяції. Обчислення функції пристосованості здійснювалося з використанням отриманої нейронної мережі.

Для оптимізації процесу ферментативного гліцеролізу були задані наступні значення параметрів апарата генетичних алгоритмів: обсяг вибірки – 200, кількість елітних нащадків – 20, кількість поколінь – 50. У якості функцій мутації та схрещування використовувалися відповідно адаптивна і евристична функції.

На рис. 3 представлені найкращі (максимальні) значення функції пристосованості на відповідному поколінні функціонування генетичних алгоритмів.

Починаючи з 28 покоління (рис. 3) спостерігається наявність сталого значення функції відклику, що відповідає встановленню її оптимуму – вмісту 52,2 % мас. діацилгліцеринів у складі продукту ферментативного гліцеролізу. Цей результат досягається при наступних розрахункових значеннях вихідних параметрів: співвідношенням триацилгліцеринів і гліцерину – 1:1, кількість ферменту – 10 % мас. по відношенню до маси реакційної суміші, температура – 70 °С, час реакції – 90 хвилин.

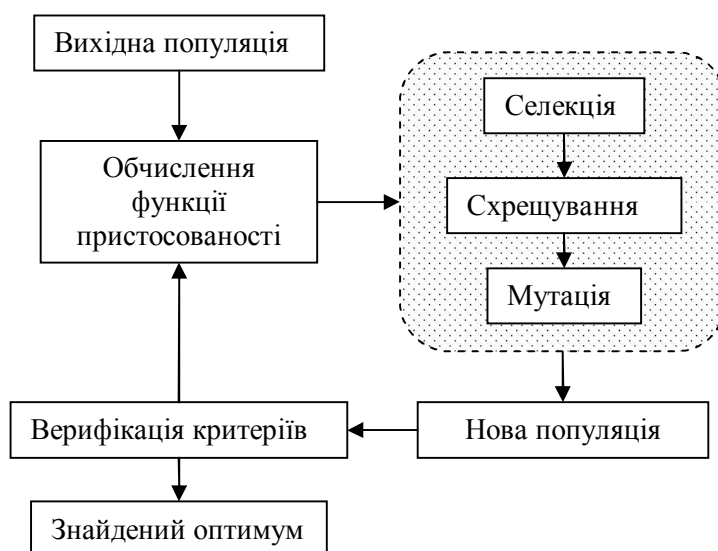


Рисунок 2 – Схема функціонування апарату генетичних алгоритмів

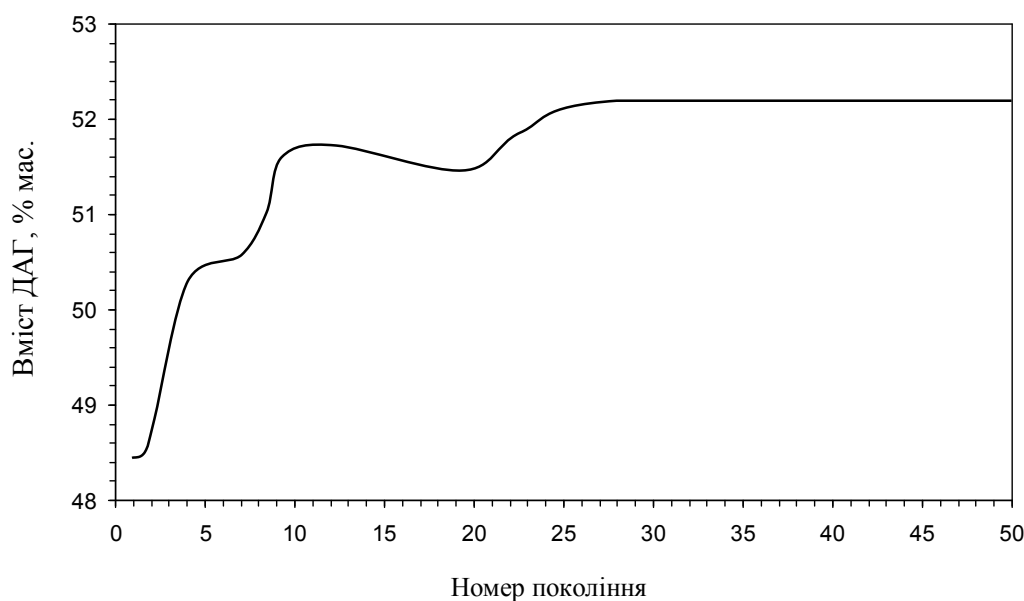


Рисунок 3 – Процес оптимізації ферментативного гліцеролізу комбінуванням методів генетичних алгоритмів і нейронних мереж

Встановлені оптимальні параметри ферментативного гліцеролізу були апробовані в умовах дослідно-промислового виробництва жирів, збагачених діацилгліцерином, на ВАТ «Іллічівський олійно-жировий комбінат». Згідно результатів випробовувань вміст діацилгліцеринів в продуктах гліцеролізу становив $51 \pm 1,5$ % мас., що добре корелюється із даними моделювання.

Література

1. Neeser J.R., German J.B. Bioprocesses and biotechnology for functional foods and nutraceuticals / J.R.Neeser, J.B.German. – New York: Marcel Dekker. Inc., 2004. – 484 p.
2. Некрасов П.О. Дослідження харчової цінності діацилгліцеринової олії / П.О. Некрасов, О.В. Подлісна, В.Г. Гопкалов // Вісник Національного технічного університету "ХПІ". – Харків: НТУ "ХПІ", 2010. – №11. – С. 170–177.

3. Некрасов, П.О. Ферментативна енергозберігаюча технологія жирів функціонального призначення / П.О. Некрасов, О.В. Подлісна, Ю.М. Плахотна // Наукові праці ОНАХТ. – Одеса, 2008. – №32. – С. 311–317.
4. Некрасов П.О. Оптимізація процесу молекулярної дистиляції при отриманні жирів, збагачених діацилгліцеридами / П.О. Некрасов // Інтегровані технології та енергозбереження. – Харків: НТУ "ХПІ", 2009. – №3. – С. 75–81.
5. Некрасов П.О. Дослідження механізму ферментативного гліцеролізу жирів / П.О. Некрасов // Інтегровані технології та енергозбереження. – Харків: НТУ "ХПІ", 2009. – №4. – С. 50–55.
6. Некрасов П.О. Термодинамічні аспекти процесу ферментативного гліцеролізу жирів / П.О. Некрасов // Вісник Національного технічного університету "ХПІ". – Харків: НТУ "ХПІ", 2010. – №22. – С. 19–25.
7. О'Брайен Р. Жиры и масла. Производство, состава и свойства, применение / Р. О'Брайен; пер. с англ. 2-го изд. В.Д. Широкова, Д.А. Бабейкиной, Н.С. Селивановой, Н.В. Магды. – СПб.: Профессия, 2007. – 752 с.
8. AOCS. In: Firestone D, editor. Official methods and recommended practices of the American Oil Chemist's Society. 5th ed. Champaign, IL: American Oil Chemists' Society (AOCS), 2003.
9. Хайкин С. Нейронные сети: полный курс, 2-е издание / С. Хайкин. – М.: Издательский дом «Вильямс», 2006. – 1104 с.
10. Рутковская Д. Нейронные сети, генетические алгоритмы и нечеткие системы / Д. Рутковская, М. Пилиньский, Л. Рутковский; пер. с польск. И.Д. Рудинского. – М.: Горячая линия-Телеком, 2006. – 452 с.
11. Baishan F.. Using genetic algorithms coupling neural networks in a study of xylitol production: medium optimisation / F. Baishan, C. Hongwen, X. Xiaolan, W. Ning, H. Zongding // Process Biochemistry. – 2003. – Vol. 38, №7. – P. 979–985.
12. Rezende M. Optimization of a large scale industrial reactor by genetic algorithms / M. Rezende, C. Costa, A. Costa, M. Maciel, R. Filho // Chemical Engineering Science. – 2008. – Vol. 63, №2. – P. 330–341.
13. Rajendra M. Prediction of optimized pretreatment process parameters for biodiesel production using ANN and GA / M. Rajendra, P. Jena, H. Raheman // Fuel. – 2009. – Vol. 88, №5. – P. 868–875.
14. Wang S. Predicting saturates of sour vacuum gas oil using artificial neural networks and genetic algorithms / S. Wang, X. Dong, R. Sun // Expert Systems with Applications. – 2010. – Vol. 37, №7. – P. 4768–4771.

УДК 665:664.3

Некрасов П.А., Малько М.Н.

ОПТИМИЗАЦИЯ ПАРАМЕТРОВ ПРОЦЕССА ФЕРМЕНТАТИВНОГО ГЛИЦЕРОЛИЗА ЖИРОВ КОМБИНИРОВАНИЕМ МЕТОДОВ ГЕНЕТИЧЕСКИХ АЛГОРИТМОВ И НЕЙРОННЫХ СЕТЕЙ

Использование методов генетических алгоритмов и нейронных сетей позволило установить оптимальные режимы ферментативного глицеролиза жиров. Результаты лабораторных и опытно-промышленных испытаний подтвердили адекватность моделирования оптимума для основных четырех параметров процесса: соотношение субстратов, количество фермента, температура и время.

Nekrasov P.O., Malko M.M.

PROCESS PARAMETERS OPTIMIZATION OF ENZYMATIC GLYCEROLIZES OF FATS USING COMBINED NEURAL NETWORK GENETIC ALGORITHMS TECHNIQUE

Use of artificial neural network-genetic algorithm technique made it possible to determine optimal process parameters of enzymatic glycerolizes of fats. The results of laboratory and experimental-industrial tests corroborated optimum modeling adequacy for four primary process parameters: substrates ratio, enzyme amount, temperature and time.