



Fakultät für Maschinenwesen

Lehrstuhl für Anlagen- und Prozesstechnik

# Prozessoptimierung der industriellen Methanolsynthese mithilfe von gradientenbasierten und ableitungsfreien Optimierungsalgorithmen

Johannes Michael Sundberg

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Maschinenwesen der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines  
Doktor-Ingenieurs  
genehmigten Dissertation.

Vorsitzende(r): Prof. Dr.-Ing. Andreas Kremling

Prüfer der Dissertation:

1. Prof. Dr.-Ing. Harald Klein
2. Prof. Dr.-Ing. Kai-Olaf M. Hinrichsen

Die Dissertation wurde am 15.01.2019 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Maschinenwesen am 20.05.2019 angenommen.



Teile der vorgelegten Dissertation sind in folgenden Publikationen erschienen:

SUNDBERG, J., REHFELDT, S., PESCHEL, A. & KLEIN, H.: Prozessoptimierung am Beispiel der Methanolsynthese mithilfe verschiedener lokaler Optimierungsalgorithmen, *Chemie Ingenieur Technik* 89.5 (2017), S. 675–685

CARDELLA, U., DECKER, L., SUNDBERG, J. & KLEIN, H.: Process optimization for large-scale hydrogen liquefaction, *International Journal of Hydrogen Energy* 42.17 (2017), S. 12339–12354

SUNDBERG, J., STANDL, S., ARETIN, T. VON, TONIGOLD, M., REHFELDT, S., HINRICHSSEN, O. & KLEIN, H.: Optimal process for catalytic cracking of higher olefins on ZSM-5, *Chemical Engineering Journal* 348 (2018), S. 84–94



# Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand überwiegend in meiner Zeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Anlagen- und Prozesstechnik.

Mein besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Prof. Dr.-Ing. Harald Klein. Danke für die Möglichkeit am Lehrstuhl für Anlagen- und Prozesstechnik zu arbeiten, für tief sinnige thermodynamische und prozesstechnische Fachsimpelien im In- und Ausland, für die stets offene Tür, für die Ratschläge in allen Lebens- und Tonlagen (EoH) und das konsequente Lehre-steht-an-erster-Stelle Prinzip am Lehrstuhl.

Bei Herrn Prof. Dr.-Ing. Kai-Olaf Hinrichsen möchte ich mich für die Übernahme des Zweitgutachtens bedanken. Herrn Prof. Dr.-Ing. Andreas Kremling danke ich für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes.

Meinen Kolleginnen und Kollegen am Lehrstuhl danke ich für die zahlreichen fachlichen und weniger fachlichen Diskussionen. Die freundschaftliche Atmosphäre und gegenseitige Hilfsbereitschaft bei der Arbeit hat in dieser lehrreichen Zeit sehr zur Motivation beigetragen.

Außerhalb des Lehrstuhls möchte ich Andreas Peschel danken. Er hat mich auf das Fachgebiet der Prozessoptimierung mit mathematischen Methoden gebracht, mit dem ich mich in den letzten Jahren im Rahmen dieser Arbeit intensiv beschäftigt habe.

Des Weiteren möchte ich mich bei den Studenten bedanken, die ich in meiner Zeit am Lehrstuhl betreuen durfte. Es freut mich, dass es mittlerweile einige dieser bekannten Gesichter selbst als wissenschaftliche Mitarbeiter an den Lehrstuhl gezogen hat.

Meiner Familie, ganz besonders meiner Frau und meinen Kindern, danke ich für die verständnisvolle Unterstützung und die Geduld in dieser Zeit.

Burghausen, September 2019

Johannes Sundberg



# Kurzfassung

Die Prozessoptimierung mithilfe mathematischer Methoden ist eine Schlüsseldisziplin in der Verfahrenstechnik, die Ingenieure bei der optimalen Prozessauslegung unter Einhaltung einer Vielzahl an Nebenbedingungen unterstützt. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird ein hybrider Ansatz zur Prozessoptimierung am Beispiel der industriellen Methanolsynthese angewandt. Dabei wird der Prozesssimulator UniSim<sup>®</sup> Design mit MATLAB als Optimierungsplattform gekoppelt. Die Kopplung wird mithilfe einer eigenen objektorientiert in MATLAB implementierten Schnittstelle erreicht. Auf diese Weise kann das Prozessmodell effizient im Prozesssimulator implementiert, initialisiert und gelöst werden. Zudem können die bereits vorhandenen Bibliotheken für Grundoperationen und Stoffdatenmethoden genutzt werden. Das zugehörige Optimierungsproblem kann ebenfalls über eine speziell gewählte Struktur im Prozesssimulator definiert werden. Über die Schnittstelle ist eine flexible Wahl des Optimierungsprogramms möglich. Zur Prozessoptimierung kommen sowohl gradientenbasierte als auch ableitungsfreie Optimierungsprogramme zum Einsatz. Der Prozess der industriellen Methanolsynthese wird hierfür auf Basis der Literatur zum Stand der Technik in drei Detaillierungsstufen mit steigender Komplexität modelliert. Die Zielfunktion basiert auf der thermodynamisch motivierten Kaltgaseffizienz des Prozesses. Aus verfahrenstechnischer Sicht wird so der Einfluss der steigenden Komplexität und zunehmender Zahl an Nebenbedingungen auf die optimale Prozesskonfiguration untersucht. Anhand des vollständig integrierten Gesamtprozesses werden zudem weiterführende Betrachtungen zur erreichten Kaltgaseffizienz durchgeführt. Aus numerischer Sicht erlaubt die Vielzahl an Startpunkten und Wiederholungen zudem einen direkten Vergleich der verwendeten Optimierungsprogramme. Basierend auf den numerischen Ergebnissen wird für eine schnelle Prozessoptimierung das gradientenbasierte Optimierungsprogramm IPOPT in Verbindung mit zentralen Differenzenquotienten empfohlen. Das ableitungsfreie Optimierungsprogramm CMA-ES eignet sich dagegen besonders für eine zuverlässige Prozessoptimierung ohne zusätzliche Vorarbeiten.





# Abstract

Process optimization using mathematical methods is a key discipline in process technology, which supports the engineer to achieve an optimal process design while fulfilling numerous constraints. Within this thesis, a hybrid approach to process optimization is applied using the industrial methanol synthesis as an example. The process simulator UniSim<sup>®</sup> Design is coupled with MATLAB as an optimization platform. This is achieved with an own object-oriented interface implemented in MATLAB. Thus, the process model can be implemented, initialized and solved efficiently in the process simulator. Additionally, the existing libraries for unit operations and property methods can be used for this task. The corresponding optimization problem can also be defined in the process simulator via a specially designed structure. The interface allows a flexible choice of the optimization program. Both gradient-based and derivative-free optimization programs are used for process optimization. For this purpose, the process of the industrial methanol synthesis is modelled in three detail levels with increasing complexity based on literature on the state of the art. The objective function is based on the thermodynamically motivated cold gas efficiency of the process. In terms of process technology the influence of an increasing complexity with additional constraints on the optimal process configuration is analysed. The fully integrated process is used for further studies regarding the achieved cold gas efficiency. Concerning numerical performance, the numerous starting points and repetitions allows a direct comparison of the optimization programs. Based on the numerical results, the gradient-based optimization program IPOPT in conjunction with central difference quotients is suited for a fast process optimization. For a reliable process optimization without the need for additional preparatory work, the derivative-free optimization program CMA-ES is recommended.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Vorwort</b>	<b>V</b>
<b>Kurzfassung</b>	<b>VII</b>
<b>Abstract</b>	<b>IX</b>
<b>Formelzeichen und Abkürzungen</b>	<b>XIII</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Stand des Wissens</b>	<b>5</b>
<b>3 Eigener Ansatz</b>	<b>7</b>
<b>4 Theoretische Grundlagen</b>	<b>9</b>
4.1 Allgemeines Optimierungsproblem . . . . .	9
4.2 Optimierungsalgorithmen und -programme . . . . .	10
4.2.1 Gradientenbasierte Algorithmen . . . . .	10
4.2.2 Ableitungsfreie Algorithmen . . . . .	18
4.2.3 Lokale und globale Optimierung . . . . .	25
4.2.4 Methodik für die Evaluierung . . . . .	25
4.3 Numerische Näherung der Gradienten . . . . .	29
4.3.1 Ansatz . . . . .	29
4.3.2 Genauigkeit . . . . .	30
4.4 Methanolsynthese . . . . .	31
<b>5 Prozessmodelle und betrachtete Optimierungsprobleme</b>	<b>35</b>
5.1 Detaillierungsstufe 1 . . . . .	36
5.2 Detaillierungsstufe 2 . . . . .	38
5.3 Detaillierungsstufe 3 . . . . .	40
5.4 Zusammenfassung und Vergleich . . . . .	42
<b>6 Implementierung</b>	<b>45</b>
6.1 Prozessmodelle und Optimierungsprobleme . . . . .	45
6.2 Optimierungsschnittstelle . . . . .	49
6.2.1 Initialisierung . . . . .	49
6.2.2 Aufruf . . . . .	49
6.2.3 Fehlerbehandlung . . . . .	50
6.2.4 Numerische Ableitung . . . . .	50
6.2.5 Externe Grundoperationen . . . . .	51
6.3 Gewählte Einstellungen für die Optimierungsprogramme . . . . .	53

---

<b>7</b>	<b>Prozessoptimierung der Methanolsynthese</b>	<b>57</b>
7.1	Optimale Prozesskonfigurationen . . . . .	57
7.1.1	Detaillierungsstufe 1 . . . . .	59
7.1.2	Detaillierungsstufe 2 . . . . .	60
7.1.3	Detaillierungsstufe 3 . . . . .	62
7.1.4	Weiterführende Betrachtungen . . . . .	64
7.2	Evaluation der Optimierungsprogramme . . . . .	69
7.2.1	Vergleich anhand der Beurteilungskriterien . . . . .	70
7.2.2	Einfluss sekundärer Effekte . . . . .	78
7.2.3	Abschließende Beurteilung und Empfehlung . . . . .	83
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>87</b>
<b>A</b>	<b>Anhang</b>	<b>91</b>
	<b>Literatur</b>	<b>107</b>

# Formelzeichen und Abkürzungen

## Lateinische Formelzeichen

$C$	Kovarianzmatrix	-
$f(x)$	Zielfunktion	-
$g(x)$	Ungleichungsnebenbedingung	-
$h(x)$	Gleichungsnebenbedingung	-
$h$	Schrittweite für die numerische Näherung der Gradienten	-
$H_i$	Heizwert	$\frac{\text{J}}{\text{kg}}$
$I$	Zahl der Ungleichungsnebenbedingungen	-
$J$	Zahl der Gleichungsnebenbedingungen	-
$k_{ij}$	binärer Wechselwirkungsparameter	-
$K$	Zahl der Ungleichungsnebenbedingungen für die Grenzen der Optimierungsvariablen	-
$L(x, \kappa, \lambda)$	Lagrangefunktion	-
$\dot{M}$	Massenstrom	$\frac{\text{kg}}{\text{s}}$
$n$	allgemeiner Zählparameter	-
$n_{\text{Sim}}$	Zahl der benötigten Simulationsaufrufe	-
$p$	Lösung des quadratischen Ersatzproblems	-
$p$	Druck	bar
$Q$	Wärme	J
$r$	Rang	-
$s$	Vektor der Slack-Variablen	-
$t$	benötigte Zeit	min
$\bar{t}_{\text{gut}}$	im Mittel erwartete Zeit für eine gute Lösung	min
$T$	Temperatur	°C
$\Delta T$	Temperaturdifferenz	K
$x$	Vektor der Optimierungsvariablen / Molanteil (Flüssigphase)	-
$\Delta x_{\text{Sim}}$	Schrittweite zwischen zwei Simulationsaufrufen	-
$y$	Molanteil (Gasphase)	-
$z$	Vektor der Zufallszahlen	-

## Griechische Formelzeichen

$\alpha$	Schrittweitenparameter	-
$\varepsilon_{\text{rel}}$	relativer Fehler	-

$\kappa$	Lagrange Multiplikator der Ungleichungsnebenbedingungen	-
$\lambda$	Lagrange Multiplikator der Gleichungsnebenbedingungen	-
$\mu$	Gewichtungsfaktor / Barriereparameter / Strafparameter	-
$\eta_{\text{KG}}$	Kaltgaseffizienz	%
$\eta_{\text{is}}$	isentropen Wirkungsgrad	%
$\varphi_{\text{gut}}$	Anteil guter Lösungen	-
$\varphi_{\text{gültig}}$	Anteil gültiger Lösungen	-
$\varphi_{\text{Fehler}}$	Anteil fehlerhafter Lösungen	-
$\Phi(x)$	Gütefunktion	-
$\varrho$	Radius der Trust-Region	-
$\sigma$	globale Schrittweite	-
$\chi_{\text{gut,unnötig}}$	Anteil unnötiger Simulationsaufrufe	-
$\chi_{\text{Fehler}}$	Anteil fehlerhafter Simulationsaufrufe	-

### Hochgestellte Indices

$g$	$g$ -te Generation
$g + 1$	$g + 1$ -te Generation
$k$	$k$ -te Iteration
$k + 1$	$k + 1$ -te Iteration
(0)	aktuell bester Punkt
(1)	Punkt 1
(2)	Punkt 2
(neu)	neu generierter Punkt
*	am Minimum / Optimum

### Tiefgestellte Indices

beste	beste
B	Grenze
CMA-ES	von CMA-ES
$i$	Zählindex der Ungleichungsnebenbedingungen / Individuen
$j$	Zählindex der Gleichungsnebenbedingungen
$k$	Zählindex der Ungleichungsnebenbedingungen für die Grenzen der Optimierungsvariablen
min	minimal
$n_{\text{Sim}}$	der benötigten Simulationsaufrufe
OG	obere Grenze

---

$t$	der benötigten Zeit
UG	untere Grenze
$v$	vorwärtsgerichtet
$x$	der Optimierungsvariablen
$z$	zentral
$\kappa$	der Lagrange Multiplikatoren der Ungleichungsnebenbedingungen
$\lambda$	der Lagrange Multiplikatoren der Gleichungsnebenbedingungen

### Abkürzungen

BFGS	Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno
DS	Detaillierungsstufe
EA	evolutionärer Algorithmus
GDP	Generalized-Disjunctive-Programming
HD	Hochdruck
KKT	Karush-Kuhn-Tucker
LHS	Latin Hypercube Sampling
MD	Mitteldruck
MeOH	Methanol
NB	Nebenbedingung
OG	obere Grenze
OV	Optimierungsvariable
$SN$	Stöchiometriezahl
SP	Startpunkt
SQP	Sequential-Quadratic-Programming
Syngas	Synthesegas
UG	untere Grenze
$v$	vorwärtsgerichtete Differenzenquotienten
$z$	zentrale Differenzenquotienten





# 1 Einleitung

Methanol ist eine der wichtigsten chemischen Rohmaterialien, das vor allem als Edukt, Lösungsmittel und Energieträger eingesetzt wird [OTT et al. 2012]. Laut BLUMBERG et al. 2017 erreichte die weltweite jährliche Produktionsmenge in 2015 bereits 83 Millionen Tonnen, Tendenz weiter steigend. Verfahrenstechnische Prozesse für derartig große Produktionskapazitäten sind aus wirtschaftlichen Gründen so ressourcen- und energieeffizient wie möglich zu gestalten. Dabei ist auf sinnvolle technische Randbedingungen zu achten, um beispielsweise Temperaturobergrenzen für die verwendeten Werkstoffe zu berücksichtigen. Daneben führt ein zunehmendes Umweltbewusstsein zu immer strengeren zusätzlichen Rahmenbedingungen für die Auslegung. So müssen für Emissionen in Luft und Wasser häufig bestimmte Grenzwerte eingehalten werden, die als Nebenbedingungen durch den Prozessingenieur zu berücksichtigen sind. Die mathematische Prozessoptimierung ist in diesem Zusammenhang eine Schlüsseldisziplin, die die optimale Prozessauslegung unter Einhaltung einer Vielzahl von Randbedingungen erleichtert und die Ingenieure sowohl bei der Verfahrensentwicklung als auch der Verbesserung bestehender Anlagen unterstützt.

Klassischerweise wird die Auslegung verfahrenstechnischer Prozesse mithilfe speziell entwickelter Prozesssimulatoren durchgeführt. Diese erlauben eine schnelle und zuverlässige Implementierung und Lösung der Prozessmodelle. Die Flexibilität und die Leistungsfähigkeit im Bereich der Prozessoptimierung ist dabei jedoch oft begrenzt [KHAN et al. 2012, WAHL et al. 2013]. Im Gegensatz dazu können mit algebraischen Modellierungssprachen wie GAMS oder AMPL große gleichungsbasierte Modelle implementiert, effizient gelöst und mithilfe verschiedener Optimierungsalgorithmen optimiert werden [KARUPPIAH et al. 2008, DAHDAH & MITSOS 2014]. Die Implementierung und Initialisierung dieser großen Gleichungssysteme ist hierbei allerdings eine zeitaufwendige und komplexe Vorarbeit [NAVARRO-AMORÓS et al. 2014].

Alternativ dazu lassen sich mithilfe von hybriden Ansätzen zur Prozessoptimierung Vorteile von beiden Methoden nutzen. Dabei wird ein konventioneller, sequentiell-modularer Prozesssimulator über eine geeignete Schnittstelle mit einer flexiblen und leistungsstarken Optimierungsplattform gekoppelt. Die Prozesssimulation kann so durch den Nutzer wie gewohnt im Prozesssimulator implementiert, initialisiert und gelöst werden. Zudem kann auf die bereits vorhandenen Modelle für Grundoperationen und thermodynamische Stoffdaten zurückgegriffen werden. Die eigentliche Prozessoptimierung wird anschließend über eine geeignete Schnittstelle mittels externer Optimierungsprogramme durchgeführt. Dadurch wird dem Nutzer eine flexible Wahl des Optimierungsalgorithmus ermöglicht.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird ein derartiger hybrider Ansatz zur Prozessoptimierung am Beispiel der industriellen Methanolsynthese eingesetzt. Der Prozess der Methanolsynthese wird auf Basis der Literatur zum Stand der Technik in drei Detaillierungsstufen mit zunehmender Komplexität modelliert und in dem kommerziellen Prozesssimulator UniSim<sup>®</sup> Design V430 von Honeywell implementiert. Die eigentliche

Prozessoptimierung erfolgt sowohl über gradientenbasierte als auch ableitungsfreie Optimierungsprogramme, die mittels einer selbst in MATLAB implementierten Schnittstelle mit dem Prozesssimulator gekoppelt werden. Aus verfahrenstechnischer Sicht lassen sich so Erkenntnisse zu der jeweils optimalen, thermodynamisch günstigsten Prozesskonfiguration erlangen und interpretieren. Die Güte des Prozesses wird dabei anhand der sogenannten Kaltgaseffizienz beurteilt. Die zugehörige Prozessoptimierung wird für jedes Optimierungsprogramm mit einer großen Zahl an unterschiedlichen Startpunkten mit jeweils mehreren Wiederholungen durchgeführt. Aus numerischer Sicht kann dadurch ein direkter Vergleich der Effizienz der verwendeten Optimierungsprogramme erfolgen.

Im Folgenden wird hierfür zunächst in Kapitel 2 der Stand des Wissens gezeigt, der Fokus liegt hier auf vergleichbaren hybriden Ansätzen zu Prozessoptimierung aus der Literatur. Anschließend wird der hier verfolgte eigene Ansatz in Kapitel 3 vorgestellt.

Kapitel 4 behandelt die theoretischen Grundlagen. Neben der mathematische Definition von Optimierungsproblemen werden die verwendeten gradientenbasierten und ableitungsfreien Optimierungsprogramme jeweils mit ihrem grundlegendem Ansatz sowie ihren charakteristischen Eigenschaften vorgestellt. Für gradientenbasierte Optimierungsprogramme ist im Rahmen der Arbeit eine numerische Näherungslösung für die Gradienten erforderlich. Die dabei durch den hybriden Ansatz auftretenden Besonderheiten werden in einem weiteren Abschnitt behandelt. Abschließend erfolgt eine Beschreibung der wesentlichen Prozessabschnitte der industriellen Methanolsynthese.

Im nachfolgenden Kapitel 5 werden die Prozessmodelle und zugehörigen Annahmen für die drei Detaillierungsstufen anhand von Verfahrensfließbildern erläutert. Parallel dazu werden die zugehörigen Optimierungsprobleme mit Zielfunktion, Optimierungsvariablen und Nebenbedingungen definiert und im letzten Abschnitt zusammenfassend gegenübergestellt.

Kapitel 6 zur Implementierung behandelt die konkrete Umsetzung der Prozessmodelle in UniSim<sup>®</sup> Design, insbesondere softwarespezifische Besonderheiten und Einstellungen. Zudem wird die Struktur zur Definition der Optimierungsprobleme auf der Seite des Prozesssimulators erläutert, die für den Zugriff durch die Optimierungsschnittstelle in MATLAB erforderlich ist. Die objektorientiert implementierte Optimierungsschnittstelle wird im Anschluss beschrieben, bevor die im Rahmen der Arbeit gewählten Einstellungen für die Optimierungsprogramme dargelegt werden.

Kapitel 7 umfasst die Ergebnisse zur Prozessoptimierung der Methanolsynthese und ist in zwei Abschnitte unterteilt. Im ersten Abschnitt werden die optimalen Prozesskonfigurationen für die drei Detaillierungsstufen vorgestellt und diskutiert. Die Ergebnisse und Interpretationen der Prozessoptimierung werden durch weiterführende Betrachtungen zur Kaltgaseffizienz ergänzt und der hier erreichte Wert mit Literaturdaten verglichen. Im zweiten Abschnitt werden die verwendeten Optimierungsprogramme anhand der numerischen Ergebnisse evaluiert. Mithilfe verschiedener Beurteilungskriterien werden Rückschlüsse auf die Effizienz der Optimierungsprogramme gezogen, das geeignetste Kriterium für einen Vergleich herausgearbeitet und dieses bezüglich seiner Aussagekraft

diskutiert. Das Kapitel wird durch eine abschließende Beurteilung und Empfehlung der Optimierungsprogramme abgeschlossen.

Kapitel 8 beinhaltet eine Zusammenfassung der Arbeit und gibt darüber hinaus einen Ausblick auf mögliche Schwerpunkte für zukünftige Arbeiten auf dem Gebiet.



## 2 Stand des Wissens

Im Rahmen dieser Arbeit wird ein hybrider Ansatz zur Prozessoptimierung verfolgt. Ein kommerziell verfügbarer Prozesssimulator wird hierfür mit einem externen Optimierungsprogramm gekoppelt. Aktuell werden hierzu zahlreiche unterschiedliche Ansätze in der Literatur beschrieben.

Eine häufige Kombination ist die Verwendung von Aspen Plus<sup>®</sup> zusammen mit einem evolutionären Algorithmus (EA). BUDE & REPKE 2015 setzen beispielsweise den EA MIDACO von SCHLUETER 2012 zur Optimierung einer heterogenen Azeotrop-Rektifikation mittels Trennwandkolonne ein. ERNST 2014 entwickelte einen maßgeschneiderten EA für die multikriterielle Prozessoptimierung. Dieser wurde im Anschluss erfolgreich für die Apparateoptimierung einer Trennwandkolonne im Technikumsmaßstab und die Prozessoptimierung des Styrolprozesses angewendet. WANG & FENG 2013 nutzen das kommerzielle Programm ModeFrontier mit dem dort verfügbaren EA NSGA-II von DEB et al. 2002 für die mehrkriterielle Optimierung der Wasserstoffproduktion aus Raffineriegasen. URSELMANN et al. 2015 nutzen einen eigenen memetischen Algorithmus, der zuvor in einer Arbeit von URSELMANN et al. 2011 entwickelt wurde. Dabei wird ein EA für die globale Optimierung mit einem ableitungsfreien Optimierungsverfahren zur weiteren lokalen Optimierung der erhaltenen Lösungen ergänzt. Dieser Ansatz wurde in einer aktuellen Arbeit weiterentwickelt und auf einen Prozess zur Ethanol Trocknung mit dem Benzol als Schleppmittel angewendet [JANUS et al. 2017].

Auch in Verbindung mit dem Prozesssimulator CHEMCAD finden sich ähnliche Ansätze. OTTE et al. 2016 nutzen den in vorangegangenen Arbeiten von OCHOA et al. 2010 entwickelten stochastischen Optimierungsalgorithmus MIPT für den Retrofit einer bestehenden Anlage und geben eine Übersicht über aktuelle Arbeiten zur Kopplung von Optimierungsprogrammen und Prozesssimulatoren. KURNATOWSKI et al. 2017 beschreiben eine durch Excel VBA gesteuerte mehrkriterielle Optimierung von zwei Rektifikationsprozessen mit den gradientenbasierten Optimierungsprogrammen NLPQLP und MISQP. Von ZOBEL et al. 2005 wird die Trennung methanolhaltiger Abwasserströme mithilfe eines EA gezeigt. Dabei erfolgt die Implementierung der Optimierungsanwendung als Besonderheit innerhalb der Umgebung des Prozesssimulators, da hier auf eine interne Schnittstelle zurückgegriffen werden kann. ZOBEL et al. 2006 nutzen den Ansatz weiter zur Optimierung eines industriellen Batch-Prozesses.

Der Prozesssimulator Aspen HYSYS<sup>®</sup> wird von ALABDULKAREM et al. 2011 und MOEIN et al. 2015 zusammen mit dem genetischen Algorithmus GA der MATLAB Optimization Toolbox<sup>™</sup> eingesetzt um einen Ergasverflüssigungsprozess zu optimieren. DEL NOGAL et al. 2008 nutzen einen eigenen Prozesssimulator, der bei Bedarf auf die Aspen HYSYS<sup>®</sup> Stoffdaten zurückgreifen kann. Mithilfe eines genetischen Algorithmus mit nachfolgender gradientenbasierter Optimierung wird ein Gemischkältekreislauf optimiert. NAVARRO-AMORÓS et al. 2014 verwenden den von RAMAN & GROSSMANN 1994 entwickelten Generalized-Disjunctive-Programming (GDP)-Ansatz, um den Synthesekreislauf einer

Methanolanlage strukturell zu optimieren. Von CABALLERO et al. 2007 werden drei Prozessbeispiele ebenfalls als GDP Problemstellungen definiert, zur Lösung allerdings als MINLP Problemstellungen reformuliert. ASPELUND et al. 2010 optimieren einen einfachen Prozess zur Erdgasverflüssigung mithilfe der ableitungsfreie Tabu-Suche in Kombination mit dem Nelder-Mead Verfahren. Der gleiche Prozess wird auch von WAHL et al. 2013 untersucht, allerdings mit einem gradientenbasierten Sequential-Quadratic-Programming (SQP)-Verfahren. Eine aktuelle Arbeit von KHAN et al. 2016 zeigen die Optimierung eines Erdgasverflüssigungsprozesses mit zwei Gemischkältekreisläufen. Dabei werden Optimierungen mit einzelnen Zielfunktionen mithilfe des Complex oder Box Verfahrens durchgeführt, die anschließende mehrkriterielle Optimierung erfolgt mit genetischen Algorithmus gamultiobj der MATLAB Optimization Toolbox<sup>TM</sup>.

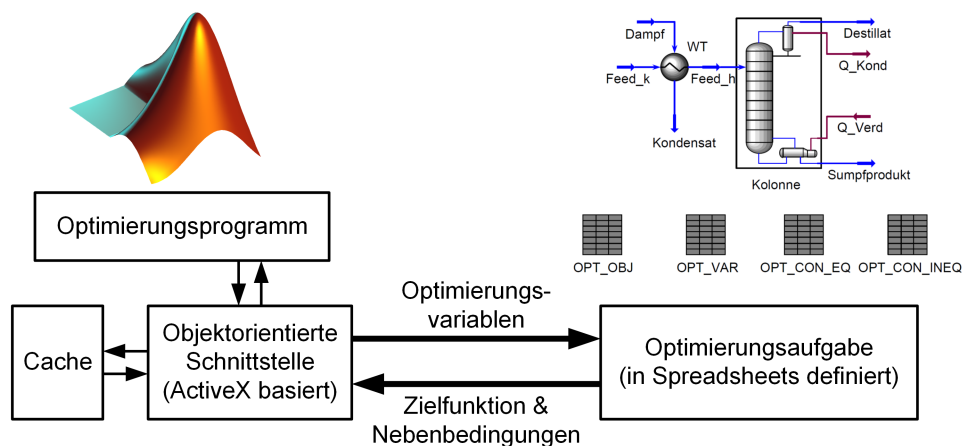
Honeywells UniSim<sup>®</sup> Design Suite ist ebenfalls Gegenstand aktueller Untersuchungen. So nutzen KHAN et al. 2012 den Simulator in Verbindung mit dem gradientenbasierten Optimierungsprogramm fmincon aus der MATLAB Optimization Toolbox<sup>TM</sup> zur Optimierung eines Erdgasverflüssigungsprozesses mit einem Gemischkältekreislauf. Eine darauf aufbauende Arbeit von KHAN & LEE 2013 nutzt zur Optimierung das metaheuristische Partikelschwarmverfahren. CAO et al. 2017 verwenden ebenfalls das Partikelschwarmverfahren, allerdings zur Optimierung einer industriellen Luftzerlegungsanlage. OH et al. 2016 zeigen die strukturelle Optimierung einer Aminwäsche zur CO<sub>2</sub> Abtrennung mithilfe der MATLAB Optimization Toolbox<sup>TM</sup>. Die mit dem genetischen Algorithmus GA im ersten Schritt gefundene Lösung wird dabei in einem zweiten Schritt mit dem gradientenbasierten Optimierungsprogramm fmincon weiter verbessert.

Ein Großteil dieser in der Literatur beschriebenen Ansätze beruht auf ableitungsfreien evolutionären, metaheuristischen oder stochastischen Optimierungsverfahren. Deutlich seltener werden gradientenbasierte Verfahren eingesetzt, die laut BIEGLER 2014 für derartige Optimierungsprobleme geeignet sind. Zudem wird in der Regel lediglich ein bestimmtes Optimierungsverfahren anhand eines einzelnen Optimierungsproblems betrachtet.

### 3 Eigener Ansatz

Die Flexibilität des hybriden Ansatzes zur Prozessoptimierung ermöglicht einen direkten Vergleich unterschiedlicher Optimierungsprogramme. Im Rahmen dieser Arbeit soll hierfür der Gesamtprozess der industriellen Methanolsynthese in verschiedenen Detaillierungsstufen als Anwendungsbeispiel betrachtet werden. Die steigende Komplexität stellt dabei eine zunehmende Herausforderung für die Optimierungsprogramme dar. Gleichzeitig ist der Prozess gut in der Literatur dokumentiert und es können sinnvolle Annahmen und Nebenbedingungen gewählt werden. So kann gleichzeitig untersucht werden wie sich die zunehmende Komplexität auf die optimale Prozesskonfiguration und auf die numerische Effizienz der Optimierungsprogramme auswirkt.

Der hybride Ansatz wird in Form einer eigenen objektorientierten Schnittstelle in MATLAB umgesetzt [SUNDBERG et al. 2017]. Ziel ist eine flexible Implementierung, die für beliebige Prozesse in Aspen HYSYS® oder UniSim® Design verwendet werden kann. Das Optimierungsproblem wird dabei vollständig im Prozesssimulator definiert, um die Benutzerfreundlichkeit zu verbessern.



**Abbildung 3.1:** Schematische Darstellung der Optimierungsschnittstelle nach SUNDBERG et al. 2017

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendete Schnittstelle wurde daneben auch erfolgreich zur Optimierung einer industriellen Anlage zur Wasserstoffverflüssigung verwendet [CARDELLA et al. 2017]. Zudem wurde ein optimaler Gesamtprozess für das katalytische Cracken von höheren Olefinen entwickelt [SUNDBERG et al. 2018]. Hierfür wurde ein in MATLAB implementiertes externes Reaktormodell [ARETIN et al. 2015] parallel zur Prozesssimulation in die Optimierungsaufgabe eingebunden<sup>1</sup>.

<sup>1</sup> siehe auch Abschnitt 6.2.5





# 4 Theoretische Grundlagen

Ziel der Arbeit ist die systematische Prozessoptimierung der industriellen Methanolsynthese mithilfe verschiedener Optimierungsprogramme. Im Folgenden werden daher die Grundbegriffe für die mathematische Formulierung von Optimierungsproblemen vorgestellt. Dies dient als Basis für die spätere Formulierung für das betrachtete Anwendungsbeispiel.

Anschließend werden die betrachteten Optimierungsprogramme zur Lösung des Optimierungsproblems charakterisiert und die Methodik für deren Evaluierung und Vergleich erläutert. Daneben wird die numerische Näherung der Gradienten für die gradientenbasierten Optimierungsprogramme beschrieben. Abschließend werden das Prinzip und die Prozessabschnitte der industriellen Methanolsynthese vorgestellt.

## 4.1 Allgemeines Optimierungsproblem

Ein allgemeines, beschränktes Optimierungsproblem lässt sich nach ULBRICH & ULBRICH 2012 mathematisch beschreiben als

$$\begin{aligned} \min_x \quad & f(x) \\ \text{u.d.N.} \quad & g(x) \leq 0 \\ & h(x) = 0. \end{aligned} \tag{4.1}$$

Ziel ist die Minimierung der Zielfunktion  $f(x)$  unter Einhaltung der Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  und Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$ . Hierfür wird der Vektor der Optimierungsvariablen  $x$  geeignet verändert. Soll eine Funktion  $f(x)$  maximiert werden, kann die Aufgabe durch Verwenden der Zielfunktion  $-f(x)$  wieder in ein Minimierungsproblem überführt werden [NOCEDAL & WRIGHT 2006].

Im Rahmen dieser Arbeit werden Problemstellungen aus der Prozessoptimierung untersucht, die kontinuierliche Optimierungsvariablen  $x$  und eine nichtlineare Zielfunktion  $f(x)$  mit nichtlinearen Nebenbedingungen aufweisen. Es handelt sich daher um sogenannte nonlinear-programming (NLP) Problemstellungen. Die Optimierungsvariablen  $x$  weisen zudem untere und obere Grenzen auf, die über lineare Ungleichungsnebenbedingungen in der Form

$$x_{UG} \leq x \leq x_{OG} \tag{4.2}$$

repräsentiert werden. Diese werden im Folgenden aufgrund ihrer Linearität gegebenenfalls getrennt von  $g(x)$  betrachtet und als  $g_B(x) \leq 0$  dargestellt.

Aufgrund des verwendeten hybriden Ansatzes zur Prozessoptimierung handelt es sich zudem um Black-Box Problemstellungen. Die Zusammenhänge zwischen Optimierungsvariablen, Zielfunktion und Nebenbedingungen sind dabei nur indirekt über Funktionsauswertungen zugänglich.

## 4.2 Optimierungsalgorithmen und -programme

Die betrachteten Optimierungsprogramme sind in Tabelle 4.1 dargestellt. In den folgenden Abschnitten werden die dort implementierten gradientenbasierten und ableitungsfreien Algorithmen kurz erläutert, um einen Einblick in die unterschiedliche Vorgehensweise und die jeweiligen charakteristischen Eigenschaften der Ansätze zu geben. Dies bildet die Grundlage für die spätere Diskussion der numerischen Ergebnisse für die Optimierungsprogramme. Anschließend werden die Begriffe der lokalen und globalen Optimierung behandelt und deren Bedeutung in der vorliegenden Arbeit erläutert. Im letzten Abschnitt wird die Methodik für den Vergleich der Optimierungsprogramme anhand der numerischen Ergebnisse beschrieben.

**Tabelle 4.1:** Verwendete Optimierungsprogramme

Name	Typ	Bibliothek
fmincon (sqp)	gradientenbasiert	MATLAB Optimization Toolbox 2016b
IPOPT v3.12.6	gradientenbasiert	OPTI Toolbox
COBYLA	ableitungsfrei	OPTI Toolbox / NLopt v2.4.2
CMA-ES v3.61.beta	ableitungsfrei	.m-Datei
GA	ableitungsfrei	MATLAB Global Optimization Toolbox 2016b

### 4.2.1 Gradientenbasierte Algorithmen

Gradientenbasierte Algorithmen benötigen die Gradienten der Zielfunktion und der Nebenbedingungen bezüglich der gewählten Optimierungsvariablen. Ist das Optimierungsproblem in Form eines Gleichungssystems bekannt, können hierfür analytische Gleichungen bereitgestellt oder die Gradienten für einen vollständig offenen Programmcode durch automatisches Differenzieren ermittelt werden [NOCEDAL & WRIGHT 2006]. Für die Black-Box Probleme in dieser Arbeit wird der Gradient numerisch über Differenzenquotienten bestimmt. Dabei ergeben sich Besonderheiten, die in den Abschnitten 4.3 und 6.2.4 genauer behandelt werden. Ausführliche Beschreibungen zu gradientenbasierten Optimierungsalgorithmen sind bei NOCEDAL & WRIGHT 2006 zu finden. BIEGLER 2010 bietet ebenfalls eine gute Übersicht mit Bezug zur Anwendung in der Prozessoptimierung.

Vor der Beschreibung der hier verwendeten gradientenbasierten Optimierungsprogramme soll zunächst das Ziel, die Lösung des Optimierungsproblems in Gleichung (4.1), genauer charakterisiert und definiert werden.

Für den einfachen Fall eines unbeschränkten Optimierungsproblems mit einer zweifach differenzierbaren Zielfunktion  $f(x)$  verschwindet an dem gesuchten Minimum  $x^*$  der Gradient  $\nabla f(x)$ . Die notwendige Bedingung erster Ordnung lässt sich nach NOCEDAL & WRIGHT 2006 formulieren als

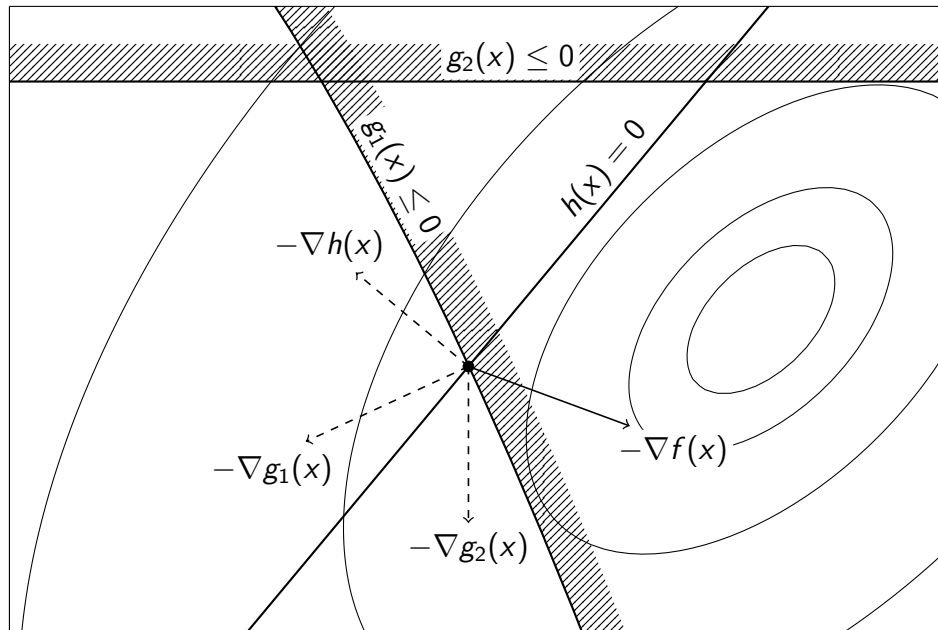
$$\nabla f(x^*) \stackrel{!}{=} 0. \quad (4.3)$$

Derartige Punkte können Minimum, Maximum oder Sattelpunkt sein. Daher ist zusätzlich eine hinreichende Bedingung zweiter Ordnung erforderlich. Nach dieser muss die Hesse-Matrix  $\nabla^2 f(x^*)$  laut NOCEDAL & WRIGHT 2006 positiv definit sein, d. h. sie darf nur Eigenwerte  $> 0$  aufweisen. Für eine einfache quadratische Funktion mit einer Variablen ist dies gleichbedeutend mit einer zweiten Ableitung  $> 0$ . So wird sichergestellt, dass es sich tatsächlich um ein Minimum handelt.

Für ein allgemeines Optimierungsproblem mit Nebenbedingungen  $g(x)$  und  $h(x)$  ist die Formulierung nicht ganz intuitiv. BIEGLER 2010 zeigt hierzu eine anschauliche, physikalisch motivierte Herleitung, die als Grundlage für die folgende Beschreibung dient. Die Zielfunktion  $f(x)$  wird als eine Hyperfläche betrachtet, auf der eine Kugel durch die Schwerkraft unbeschränkt zum tiefsten Punkt rollt, dem gesuchten Minimum. Die Kugel kommt dort zum Stehen, da keine resultierende Kraft in Richtung der Optimierungsvariablen verbleibt. Dies ist äquivalent zu Gleichung (4.3).

Wird die Bewegung der Kugel durch Nebenbedingungen eingeschränkt, bildet sich an dem gesuchten Minimum ebenfalls ein Kräftegleichgewicht aus. Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  stellen dabei Barrieren dar, die die Kugel behindern und eine Kraft in einer Richtung senkrecht zu ihrem Verlauf aufnehmen können. Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$  werden als Schienen betrachtet, auf denen die Kugel entlangrollt. Diese können Kräfte in beiden Richtungen senkrecht zu ihrem Verlauf aufnehmen. In Abbildung 4.1 ist dies für ein durch Nebenbedingungen beschränktes zweidimensionales Optimierungsproblem veranschaulicht. Die schwarze Kugel kommt an dem gezeigten Optimum mit den aktiven Nebenbedingungen  $g_1(x)$  und  $h(x)$  zum Liegen,  $g_2(x)$  stellt in dem Beispiel eine am Optimum inaktive Ungleichungsnebenbedingung dar.

Die Richtung aller wirkenden Kräfte wird durch die jeweiligen Gradienten bestimmt. Der Gradient  $-\nabla f(x^*)$  der Zielfunktion repräsentiert die Richtung des steilsten Abstiegs und damit die Richtung der Hangabtriebskraft senkrecht zu den Höhenlinien, die Gradienten der Ungleichungsnebenbedingungen  $-\nabla g_i(x^*)$  und der Gleichungsnebenbedingung  $-\nabla h(x^*)$  stellen die Richtungen der möglichen Gegenkräfte dar. Da die absoluten Werte der Zielfunktion und der Nebenbedingungen nicht ineinander umgerechnet werden können sind die Beträge der zugehörigen Vektoren allerdings nicht direkt vergleichbar.



**Abbildung 4.1:** Darstellung zur physikalisch motivierten Herleitung der Optimalitätsbedingungen für beschränkte Optimierungsprobleme nach BIEGLER 2010; Höhenlinien der Zielfunktion  $f(x)$  mit Ungleichungsnebenbedingungen  $g_1(x)$  und  $g_2(x)$  sowie der Gleichungsnebenbedingung  $h(x)$ ; lediglich  $g_1(x)$  und  $h(x)$  sind am Optimum aktiv

Um die resultierende Kraft für das Kräftegleichgewicht zu ermitteln, können die Kräfte vor der Addition durch die sogenannten Lagrange-Multiplikatoren  $\kappa$  und  $\lambda$  geeignet skaliert werden. Befindet sich die Kugel an dem gesuchten Minimum  $x^*$  und kommt damit zum Stillstand, muss die resultierende Kraft bei geeigneter Wahl der Lagrange-Multiplikatoren analog zu dem unbeschränkten Fall in Gleichung (4.3) verschwinden. Dies lässt sich nach ULBRICH & ULBRICH 2012 verallgemeinert ausdrücken durch

$$\nabla_x L(x^*, \kappa^*, \lambda^*) = \nabla f(x^*) + \sum_{i=1}^I \kappa_i^* \nabla g_i(x^*) + \sum_{j=1}^J \lambda_j^* \nabla h_j(x^*) \stackrel{!}{=} 0. \quad (4.4)$$

Dabei ist  $\nabla_x L(x^*, \kappa^*, \lambda^*)$  der Gradient der Lagrangefunktion bzw. die resultierende Kraft. Diese ergibt sich allgemein aus dem Gradienten  $\nabla f(x^*)$  der Zielfunktion und den Gradienten der Nebenbedingungen  $\nabla g_i(x^*)$  und  $\nabla h_j(x^*)$  sowie deren zugehörigen Lagrange-Multiplikatoren  $\kappa_i^*$  und  $\lambda_j^*$ .

Ausgehend von diesen Überlegungen lassen sich die notwendigen Bedingungen erster Ordnung formulieren, die sogenannten Karush-Kuhn-Tucker (KKT) Bedingungen für

lokale Lösungen  $x^*$  beschränkter Optimierungsprobleme. Neben Gleichung (4.4) sind laut NOCEDAL & WRIGHT 2006 folgende Bedingungen zu erfüllen:

$$h(x^*) = 0 \tag{4.5}$$

$$g(x^*) \leq 0 \tag{4.6}$$

$$\kappa_i \geq 0, \text{ für alle } i \tag{4.7}$$

$$\kappa_i g_i(x^*) = 0, \text{ für alle } i \tag{4.8}$$

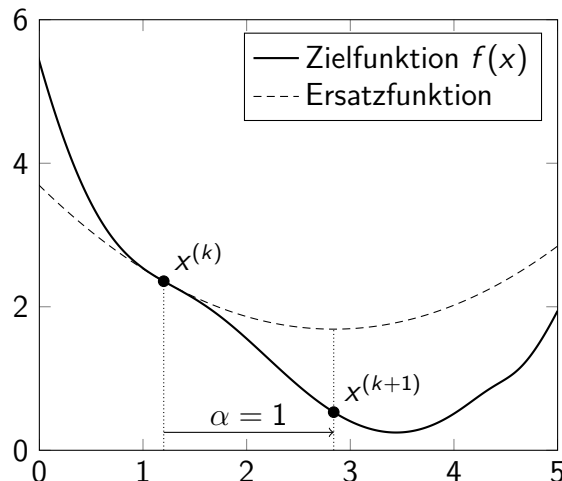
$$\lambda_j h_j(x^*) = 0, \text{ für alle } j. \tag{4.9}$$

Gleichungen (4.5)-(4.6) stellen lediglich die Einhaltung der Nebenbedingungen sicher. Gleichung (4.7) lässt für Ungleichungsnebenbedingungen nur positive Lagrange-Multiplikatoren zu, da die Begrenzung nur in einer Richtung wirkt und Kräfte damit nur in einer Richtung aufgenommen werden können. Gleichungen (4.8)-(4.9) stellen die Komplementaritätsbedingungen dar. Die jeweilige Nebenbedingung ist dadurch am Optimum exakt erfüllt und nimmt den Wert 0 an ( $g_1(x)$  und  $h(x)$  in Abbildung 4.1), und bzw. oder die Nebenbedingung ist nicht aktiv ( $g_2(x)$  in Abbildung 4.1) und der zugehörige Lagrange-Multiplikator  $\kappa_i$  bzw.  $\lambda_j$  nimmt den Wert 0 an.

Die zusätzliche hinreichende Optimalitätsbedingung zweiter Ordnung erfordert laut ULBRICH & ULBRICH 2012, dass die Hesse-Matrix  $\nabla^2 L_{xx}(x^*, \kappa^*, \lambda^*)$  der Lagrange-Funktion analog zu dem zuvor beschriebenen unbeschränkten Problem am Optimum positiv definit sein muss. Daneben sind Qualifikationen für die Nebenbedingungen gefordert. Beispielsweise müssen diese linear unabhängig sein, um eine eindeutige Lösung des zuvor beschriebenen Kräftegleichgewichts in Gleichung (4.4) zu erlauben.

Viele gradientenbasierte Algorithmen basieren auf der hier gezeigten Charakterisierung des gesuchten Minimums. Im Folgenden werden die für diese Arbeit betrachteten gradientenbasierten Optimierungsprogramme kurz vorgestellt.

**fmincon** Das gradientenbasierte Optimierungsprogramm `fmincon` ist Teil der Optimization Toolbox in MATLAB. Die hier verwendete Unteroption `sqp` (engl. „sequential quadratic programming“) implementiert einen gleichnamigen Algorithmus, der nach ULBRICH & ULBRICH 2012 zu den effizientesten Optimierungsansätzen gehört. Für eine detaillierte Beschreibung des in der Unteroption `sqp` implementierten Algorithmus verweist die `fmincon` Dokumentation auf NOCEDAL & WRIGHT 2006. Prinzipiell wird das Optimierungsproblem in Gleichung (4.1) in dem Algorithmus durch eine Reihe von einfacher lösbarer quadratischen Ersatzproblemen angenähert (siehe Abbildung 4.2) und iterativ gelöst.



**Abbildung 4.2:** Darstellung der unbeschränkten Zielfunktion  $f(x)$  mit der quadratischen Näherung (Ersatzproblem) am Punkt  $x^{(k)}$ ; die Minimierung des Ersatzproblems ergibt mit voller Schrittweite  $\alpha = 1$  den neuen Schätzwert  $x^{(k+1)}$

In Anlehnung an ULBRICH & ULBRICH 2012 lässt sich das betrachtete quadratische Ersatzproblem in Form einer Taylor-Reihe um den Punkt  $x^k$  schreiben als

$$\begin{aligned} \min_p \quad & f(x^k) + \nabla f(x^k)^T p_x + \frac{1}{2} p_x^T \nabla_{xx}^2 L(x^k, \kappa^k, \lambda^k) p_x & (4.10) \\ \text{u.d.N.} \quad & g(x^k) + \nabla g(x^k)^T p_x \leq 0, \\ & h(x^k) + \nabla h(x^k)^T p_x = 0. \end{aligned}$$

Der lineare Teil der quadratischen Ersatz-Zielfunktion wird mit dem Gradienten  $\nabla f(x^k)$  der Zielfunktion an dem aktuellen Punkt  $x^k$  abgebildet. Für den quadratischen Teil ist die im vorherigen Abschnitt eingeführte Hesse-Matrix  $\nabla^2 L_{xx}(x^k, \kappa^k, \lambda^k)$  der Lagrange-Funktion erforderlich. Aktive Nebenbedingungen werden mithilfe ihrer lokalen Gradienten  $\nabla g(x^k)$  und  $\nabla h(x^k)$  linearisiert berücksichtigt.

Die Lösung des vergleichsweise einfachen quadratischen Ersatzproblems mit linearen Gleichungs- und Ungleichungsnebenbedingungen in Gleichung (4.10) kann iterativ mithilfe von speziellen Algorithmen für quadratische Probleme (engl. „quadratic programming, QP“) erfolgen. Damit ergibt sich der Schritt bzw. Vektor  $p$  der das quadratische Ersatzproblem, die Näherung des eigentlichen Optimierungsproblems, minimiert. Die Lösung  $p$  beinhaltet dabei neben dem Vektor  $p_x$  der Optimierungsvariablen auch die zugehörigen Lagrange-Multiplikatoren  $p_\kappa$  und  $p_\lambda$ . Mithilfe von  $p_x$  kann anschließend ein neuer Schätzwert  $x^{k+1}$  für das Optimierungsproblem generiert werden.

Für Optimierungsprobleme mit ausschließlich Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$  werden Ansätze wie diese häufig auch als Newton-Ansätze bezeichnet. Laut NOCEDAL & WRIGHT 2006 wendet man in dieser alternativen Betrachtung das Newton-Verfahren an, um die Nullstelle der KKT Bedingung in Gleichung (4.4) zu finden. Die Anwendung des Newton-Verfahrens auf die linearisierte erste Ableitung ist dabei gleichbedeutend mit

einer quadratischen Näherung der Ursprungsfunktion. Der so erhaltene Newton-Schritt ist damit identisch zu der Lösung  $p$  des quadratischen Ersatzproblems in Gleichung (4.10). Als Besonderheit können diese Ersatzprobleme mit ausschließlich Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$  nach EDGAR et al. 2001 direkt als lineares Gleichungssystem gelöst werden.

In `fmincon` und anderen praxisrelevanten Optimierungsprogrammen wird die erforderliche Hesse-Matrix  $\nabla^2 L_{xx}$  der Lagrange-Funktion lediglich basierend auf der Änderung der Gradienten von Iteration zu Iteration angenähert [NOCEDAL & WRIGHT 2006]. Diese sogenannten Quasi-Newton Verfahren sparen damit zusätzlichen Aufwand zur expliziten Ermittlung der Hesse-Matrix  $\nabla^2 L_{xx}$  ein. Zudem sorgt der hierfür in der Praxis häufig verwendete Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno (BFGS) Ansatz bei der Aktualisierung dafür, dass die Hesse Matrix positiv definit bleibt und stets eine Lösung  $p$  für Gleichung (4.10) gefunden werden kann.

Der neue Schätzwert  $x^{k+1}$  ergibt sich für `fmincon` anschließend zu

$$x^{k+1} = x^k + \alpha p_x. \quad (4.11)$$

Zunächst wird, wie in Abbildung 4.2 gezeigt, versucht, mit dem Schrittweitenparameter  $\alpha = 1$  einen vollen Schritt  $p_x$  durchzuführen. Das Ergebnis wird für `fmincon` anhand einer von POWELL 1978 beschriebenen Gütefunktion

$$\Phi(x) = f(x) + \sum_{i=1}^I \mu_i [g_i(x)]_+ + \sum_{j=1}^J \mu_j |h_j(x)| \quad (4.12)$$

beurteilt. Diese berücksichtigt sowohl die Zielfunktion als auch gegebenenfalls die mit  $\mu$  gewichtete Verletzung der Nebenbedingungen. Der Ausdruck  $[g_i(x)]_+$  berücksichtigt entsprechend nur positive Werte und nimmt ansonsten den Wert 0 an. Bei einer ausreichenden Verbesserung der Gütefunktion  $\Phi(x)$  durch den neuen Punkt  $x^k + p$  wird dieser übernommen. Ansonsten wird mithilfe der Gütefunktion eine Liniensuche entlang der fixierten Suchrichtung  $p_x$  durchgeführt, d. h.  $\alpha$  in Gleichung (4.11) wird schrittweise verkleinert, bis an dem Punkt  $x^{k+1}$  ein neuer Schätzwert mit ausreichender Verbesserung von  $\Phi$  erreicht wird.

Nach NOCEDAL & WRIGHT 2006 werden die neuen Lagrange-Multiplikatoren  $\kappa^{k+1}$  und  $\lambda^{k+1}$  mit dem erhaltenen Schrittweitenparameter  $\alpha$  wie folgt ermittelt:

$$\kappa^{k+1} = \kappa^k + \alpha p_\kappa, \quad (4.13)$$

$$\lambda^{k+1} = \lambda^k + \alpha p_\lambda. \quad (4.14)$$

Am Ende einer Iteration wird zudem die Näherung der Hesse-Matrix  $\nabla^2 L_{xx}$  basierend auf den erhaltenen Ergebnissen aktualisiert.

Der gegenüber einem linearen Ersatzproblem größere Berechnungsaufwand rechtfertigt sich durch zwei Vorteile. Eine rein lineare Näherung würde zu zum Teil ineffizienten

Schritten in Richtung des steilsten Abstiegs  $-\nabla f(x)$  führen, der durch einen zusätzlichen quadratischen Term in Richtung Optimum deutlich verbessert wird.

Ein Hauptproblem von sequential quadratic programming Ansätzen wie in `fmincon` stellt die Behandlung von Ungleichungsnebenbedingungen dar [NOCEDAL & WRIGHT 2006]. Insbesondere ist für `fmincon` zunächst unbekannt, welche der Ungleichungsnebenbedingungen am Optimum aktiv ( $\kappa > 0$ ) oder inaktiv ( $\kappa = 0$ ) sind. Für diese Auswahl ergeben sich für  $n$  Ungleichungsnebenbedingungen theoretisch insgesamt  $2^n$  Möglichkeiten. Dieses kombinatorische Problem verhindert oftmals die Betrachtung sämtlicher Möglichkeiten in der Praxis. Meist wird daher basierend auf bereits bekannten funktionalen Zusammenhängen ein Satz an aktiven Ungleichungsnebenbedingungen geschätzt und gegebenenfalls während der Optimierung angepasst [NOCEDAL & WRIGHT 2006].

**IPOPT** Das Optimierungsprogramm IPOPT von WÄCHTER & BIEGLER 2006 implementiert einen Innere-Punkte-Algorithmus (auch Barriere-Algorithmus genannt). Das ursprüngliche Optimierungsproblem in Gleichung (4.1) wird hierbei als sogenanntes Barriereproblem reformuliert. Dabei werden sämtliche Ungleichungsnebenbedingungen als Barrieren mit in die Zielfunktion integriert und permanent berücksichtigt, das kombinatorische Problem für die Auswahl der aktiven Nebenbedingungen wird so umgangen.

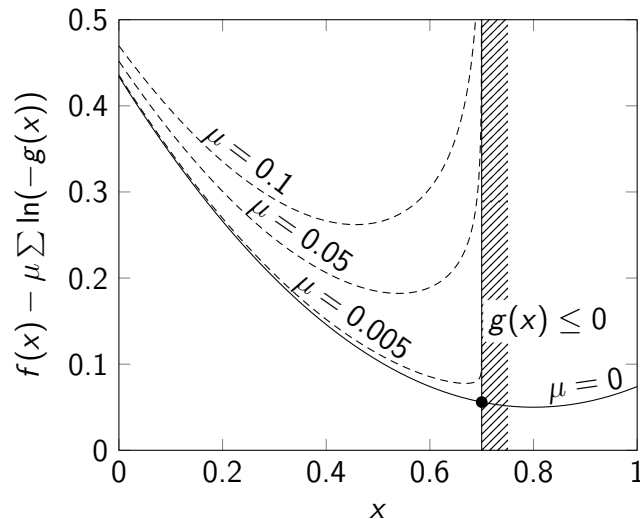
Frühere Barriere-Algorithmen modifizierten laut NOCEDAL & WRIGHT 2006 die Zielfunktion zu diesem Zweck mit einem Barriereterm, der die Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x) \leq 0$  direkt einbindet:

$$\begin{aligned} \min_x \quad & f(x) - \mu \sum_{i=1}^I \ln(-g_i(x)) \\ \text{u.d.N.} \quad & h(x) = 0. \end{aligned} \tag{4.15}$$

Der zusätzliche Barriereterm addiert dabei für  $g(x) \rightarrow 0$  Werte gegen  $\infty$  zu der ursprünglichen Zielfunktion und verhindert so eine Verletzung der Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x) \leq 0$ . Die modifizierte Zielfunktion in Gleichung (4.15) und insbesondere deren Optimum ist wie in Abbildung 4.3 gezeigt allerdings abhängig von dem Barriereparameter  $\mu$  und geht nur für  $\mu \rightarrow 0$  in die ursprüngliche Zielfunktion mit dem gesuchten Optimum  $x^*$  über. Zur Lösung des Optimierungsproblems werden daher eine Reihe von modifizierten Problemen mit abnehmendem Barriereparameter  $\mu$  gelöst. Hierfür kommen in der Regel Newton-basierte Algorithmen zum Einsatz.

Der Ansatz nach Gleichung (4.15) ist nur für  $g(x) \leq 0$  anwendbar, d. h. wenn sämtliche Ungleichungsnebenbedingungen erfüllt sind. Dies ist nur für die linearen Ungleichungsnebenbedingungen zur Beschränkung der Optimierungsvariablen  $x$  einfach zu erreichen, die im Folgenden als  $g_B(x)$  bezeichnet werden. Moderne Barriere-Algorithmen wie in IPOPT funktionieren allerdings auch unter Verletzung der Nebenbedingungen. Dafür werden die Ungleichungsnebenbedingungen nach WÄCHTER & BIEGLER 2006





**Abbildung 4.3:** Darstellung der modifizierten Zielfunktion nach Gleichung (4.15) für verschiedene Barriereparameter  $\mu$ ; Zielfunktion  $f(x) = 0.6(x - 0.8)^2 + 0.05$  und Ungleichungsnebenbedingung  $g(x) = x - 0.7 \leq 0$

und NOCEDAL & WRIGHT 2006 durch Einführung zusätzlicher frei wählbarer Slack-Variablen  $s$  entkoppelt und in Gleichungsnebenbedingungen überführt. Es ergibt sich das modifizierte Optimierungsproblem

$$\begin{aligned} \min_{x,s} \quad & f(x) - \mu \sum_{i=1}^I \ln(s_i) - \mu \sum_{k=1}^K \ln(-g_{B,k}(x)) & (4.16) \\ \text{u.d.N.} \quad & g(x) + s = 0, \\ & h(x) = 0. \end{aligned}$$

Durch die Einführung der Slack-Variablen  $s$  weist das modifizierte Problem keine expliziten Ungleichungsnebenbedingungen mehr auf und sämtliche Nebenbedingungen werden dauerhaft berücksichtigt. In den logarithmischen Barriere-termen in Gleichung (4.16) werden zudem nur direkt veränderbare Größen verwendet, die einfach  $\geq 0$  gehalten werden können. Die Slack-Variablen  $s$  können in dem Zusammenhang auch als Schätzwert für den Wert der Ungleichungsnebenbedingungen betrachtet werden, der durch die zugehörigen Gleichungsnebenbedingungen final gegen den tatsächlichen Wert konvergieren muss.

Die  $K$  Ungleichungsnebenbedingungen  $g_B(x)$  für die unteren und oberen Grenzen der Optimierungsvariablen  $x$  (siehe Abschnitt 4.1) nehmen dabei eine Sonderrolle ein. Durch den einfachen linearen Zusammenhang und die an sich bereits frei wählbaren Optimierungsvariablen  $x$  kann der Term  $-g_B(x)$  durch Werte von  $x$  zwischen den oberen und unteren Grenzen einfach  $\geq 0$  gehalten werden. Für die Ungleichungsnebenbedingungen  $g_B(x)$  müssen daher keine weiteren Slack-Variablen  $s$  eingeführt werden. Bei der Lösung des modifizierten Problems in Gleichung (4.16) ist zu beachten, dass neben den Optimierungsvariablen  $x$  auch die Slack-Variablen  $s$  mit bestimmt werden müssen.

Die Lösung des modifizierten nichtlinearen Optimierungsproblems in Gleichung (4.16) für einen gegebenen Barriereparameter  $\mu$  erfolgt iterativ und analog zum vorherigen Abschnitt für das Optimierungsprogramm `fmincon`. Die Anwendung des Newton-Verfahrens auf die KKT Bedingungen erster Ordnung mit um den aktuellen Punkt  $x^k$  linearisierten ersten Ableitungen ergibt die Lösung der quadratischen Näherung des modifizierten Optimierungsproblems. Wie für `fmincon` werden darauf basierend ein neuer Schätzwert  $x^{k+1}$  und die Lagrange-Multiplikatoren  $\kappa^{k+1}$  und  $\lambda^{k+1}$  sowie hier zusätzlich neue Werte für die Slack-Variablen  $s^{k+1}$  generiert. Der analog zu Gleichung (4.11) definierte Schrittweitenparameter  $\alpha$  wird hier durch eine zusätzliche maximale Schrittweite nach oben hin begrenzt. Diese stellt sicher, dass die logarithmierten Terme in Gleichung (4.16) während der Liniensuche sicher positive Werte annehmen und keine zu schnelle Annäherung an 0 erfahren [WÄCHTER & BIEGLER 2006].

Eine mit der Liniensuche erhaltene Lösung wird für IPOPT anhand eines Filters beurteilt [WÄCHTER & BIEGLER 2006]. Dabei werden der Zielfunktionswert und die Verletzung der Nebenbedingungen nach NOCEDAL & WRIGHT 2006 als getrennte Ziele betrachtet und nicht in einer Gütefunktion wie für `fmincon` in Gleichung (4.12) verrechnet.

Durch die getrennte Betrachtung der beiden Ziele ergibt sich eine mehrkriterielle Beurteilung. Der Filter beinhaltet dabei frühere Wertepaare von Zielfunktionswert und Verletzung der Nebenbedingungen. Kein Wertepaar darf ein anderes dominieren, d. h. sowohl einen bessere Zielfunktionswert als auch eine geringere Verletzung der Nebenbedingungen aufweisen. Dominierte Wertepaare werden ggf. aus dem Filter entfernt. Ein neuer Punkt wird für das Lösungsverfahren akzeptiert und in den Filter übernommen, wenn das Wertepaar von keinem Anderen in dem bestehenden Filter dominiert wird. Auf diese Weise entwickelt sich der Filter stetig zu einer Art Pareto-Front, für die beide Ziele anhand der neue Punkte beurteilt werden.

Zur Bestimmung des gesuchten Optimums  $x^*$  ist die iterative Lösung eines nichtlinearen Optimierungsproblems für `fmincon` nur einmal erforderlich. Für Barriere-Verfahren wie IPOPT muss dagegen eine Reihe von nichtlinearen Optimierungsproblemen mit verschiedenen  $\mu \rightarrow 0$  iterativ gelöst werden. Barriere-Verfahren umgehen dafür im Gegensatz zu `fmincon` allerdings das kombinatorische Problem bei der Auswahl der aktiven Nebenbedingungen [NOCEDAL & WRIGHT 2006]. Zur Reduktion der Rechenzeit werden die modifizierten Optimierungsprobleme zumindest zu Beginn nur mit einer geringen Genauigkeit gelöst, die sich mit abnehmendem Barriereparameter  $\mu$  und der Annäherung an das tatsächliche Optimierungsproblem schrittweise erhöht.

## 4.2.2 Ableitungsfreie Algorithmen

Ableitungsfreie Algorithmen erfordern definitionsgemäß keine Bereitstellung von Gradienten für die Zielfunktion und Nebenbedingungen und nutzen lediglich deren Funktionswerte. Eine ausführliche Einführung in die Thematik und eine detaillierte Beschreibung der verbreitetsten Ansätze ist in CONN et al. 2009 zu finden, BIEGLER 2010 zeigt eine kurze Übersicht.

Die Ansätze von ableitungsfreien Algorithmen sind häufig intuitiv und verglichen mit gradientenbasierten Verfahren einfacher zu implementieren. Insbesondere die Bereitstellung von Gradienten ist laut CONN et al. 2009 eine Hauptfehlerquelle bei der Anwendung von gradientenbasierten Optimierungsverfahren, die hier vollständig ausgeschlossen werden kann und zugleich den Zeitbedarf für die Implementierung reduziert. Ein weiterer Vorteil ergibt sich für Optimierungsprobleme mit einem signifikanten numerischen Fehler. Dessen Auswirkungen werden laut CONN et al. 2009 durch die vergleichsweise großen Schrittweiten der Algorithmen zu Beginn reduziert.

Durch den Verzicht auf den Informationsgehalt der Gradienten ist allerdings auch eine langsamere Konvergenz gegenüber den gradientenbasierten Algorithmen zu erwarten [CONN et al. 2009]. Zudem skalieren die Algorithmen nach BIEGLER 2010 oft schlecht mit der Zahl der Optimierungsvariablen. Daher sind ableitungsfreie Algorithmen in der Praxis selbst für einfache Optimierungsprobleme auf etwa 100 Optimierungsvariablen beschränkt. Dies ist für die vorliegende Arbeit allerdings ausreichend. Da für den hier gewählten Ansatz zur Prozessoptimierung ein erhöhter numerischer Fehler zu erwarten ist (siehe Abschnitt 6.1) und aufgrund der geringeren Fehleranfälligkeit bei der Anwendung, wird im Folgenden auch eine Auswahl an ableitungsfreien Algorithmen evaluiert.

Das Optimierungsprogramm COBYLA gehört dabei zu den effizienten modellbasierten Ansätzen im Bereich der ableitungsfreien Algorithmen [CONN et al. 2009]. Zusätzlich werden die Optimierungsprogramme CMA-ES und GA betrachtet, die auf Heuristiken gestützte evolutionäre Algorithmen implementieren.

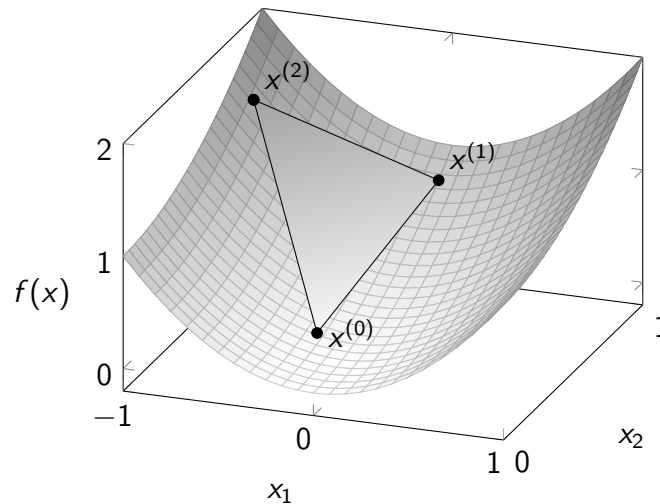
**COBYLA** Das von POWELL 1994 entwickelte Optimierungsprogramm arbeitet ohne die Bereitstellung von Gradienten. Ähnlich wie bei dem bekannten Downhill-Simplex Verfahren für unbeschränkte Probleme von NELDER & MEAD 1965 wird für ein Problem mit  $n$  Optimierungsvariablen zunächst ein Simplex aus  $n + 1$  Punkten gebildet.

Anstatt den Simplex wie NELDER & MEAD 1965 direkt geometrisch in Richtung kleinerer Zielfunktionswerte weiterzuentwickeln, nutzt POWELL 1994 diesen zur Interpolation bzw. linearen Näherung von Zielfunktion und Nebenbedingungen in Gleichung (4.1)<sup>1</sup>. Für ein 2-dimensionales Problem ergibt sich wie in Abbildung 4.4 gezeigt ein Simplex aus 3 Punkten. Dieser spannt eine Ebene auf und nähert die in der Regel nichtlineare Hyperfläche des eigentlichen Problems linear an.

Zu Beginn einer Iteration wird der aktuell beste Punkt  $x^{(0)}$  des Simplex ermittelt. Die Punkte weisen unterschiedliche Zielfunktionswerte und Verletzungen der Nebenbedingungen auf und werden daher mithilfe der Gütefunktion  $\Phi(x)$  verglichen:

$$\Phi(x) = f(x) + \mu [\max \{g(x)\}]_+ . \quad (4.17)$$

<sup>1</sup> Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$  müssen ggf. als Paare von Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  implementiert werden.



**Abbildung 4.4:** Grafische Darstellung einer nichtlinearen zweidimensionalen Zielfunktion  $f(x)$ ; der Simplex aus  $n + 1 = 3$  Punkten nähert die Hyperfläche linear an

Die größte Verletzung der Nebenbedingungen wird in Gleichung (4.17) adaptiv mit dem Strafparameter  $\mu$  skaliert. Um die Güte eines Punktes zu beurteilen, wird der Wert der Zielfunktion  $f(x)$  um diesen Betrag verschlechtert. Die Gütefunktion  $\Phi(x)$  ist damit von der Skalierung der Zielfunktion und Nebenbedingungen abhängig. Laut POWELL 1998 ist es daher hilfreich, die Nebenbedingungen auf eine ähnliche Größenordnung zu skalieren.

Nach der Bestimmung des aktuell besten Punktes  $x^{(0)}$  wird das linearisierte Optimierungsproblem gelöst, um einen neuen Punkt  $x^{(\text{neu})}$  zu generieren. Der Abstand von  $x^{(0)}$  zu dem neuen Punkt  $x^{(\text{neu})}$  ist für das lineare Problem allerdings nicht immer sinnvoll durch Nebenbedingungen beschränkt. Mit einem sogenannten Trust-Region-Ansatz wird daher die maximale Schrittweite (euklidischer Abstand) durch den Radius  $\varrho$  begrenzt:

$$\|x^{(\text{neu})} - x^{(0)}\|_2 \leq \varrho. \quad (4.18)$$

Das System aus linearer Zielfunktion, linearen Nebenbedingungen und Gleichung (4.18) wird gelöst um den Punkt  $x^{(\text{neu})}$  zu erhalten. Der Punkt  $x^{(\text{neu})}$  ersetzt anschließend einen der Punkte des bestehenden Simplex.

Der Radius  $\varrho$  wird monoton verkleinert, bis ein unterer Grenzwert erreicht wird und der Algorithmus konvergiert. Eine Verkleinerung des Radius wird durchgeführt, wenn die lineare Näherung signifikant von dem Wert der tatsächlichen Gütefunktion abweicht oder ein optimaler neuer Wert  $x^{(\text{neu})}$  mit einem Abstand deutlich kleiner als dem Radius  $\varrho$  gefunden wird.

Die Form und Abmessungen des Simplex, verglichen mit dem Radius  $\varrho$ , bestimmen die Genauigkeit linearen Näherung von Zielfunktion und Nebenbedingungen. Veränderungen ergeben sich, wenn der neue Punkt  $x^{(\text{neu})}$  einen der bestehenden Punkte

ersetzt oder der Radius  $\rho$  verkleinert wird. In beiden Fällen wird durch zusätzliche Nebenbedingungen bzw. Modifikationen dafür gesorgt, dass der Simplex weiterhin eine geeignete Beschaffenheit aufweist.

Das Optimierungsprogramm COBYLA wird von POWELL 1994 selbst aufgrund seiner einfachen Anwendbarkeit für den Fall einer geringen Anzahl an Optimierungsvariablen empfohlen. Als möglicher Nachteil wird genannt, dass die Verwendung der linearen Näherungen für bestimmte Problemstellungen eine geringe Effizienz aufweisen kann.

**CMA-ES** Der Algorithmus des Optimierungsprogramms CMA-ES (engl. „covariance matrix adaption evolution strategy“) wurde von HANSEN & OSTERMEIER 2001 entwickelt<sup>2</sup>. Laut HANSEN & KERN 2004 ist er auch für das Auffinden globaler Optima geeignet. Er gehört zur Gruppe der evolutionären Algorithmen, die basierend auf der Evolutionstheorie eine Population von einzelnen Individuen mittels Selektion, Rekombination und Mutation weiterentwickeln. Die Güte verschiedener Individuen wird dabei anhand des sogenannten Fitnesswerts beurteilt, der für unbeschränkte Optimierungsprobleme beispielsweise aus dem Zielfunktionswert gebildet werden kann.

Nach WEICKER 2015 wählen evolutionäre Algorithmen in einer Iteration zunächst mittels Selektion Individuen aus der bestehenden Population als Eltern aus. Dies kann zufällig geschehen oder z. B. abhängig vom Fitnesswert. Durch Rekombination der Merkmale (Optimierungsvariablen) dieser vielversprechenden Individuen (Punkte) werden neue Individuen generiert. Dagegen werden bei der Mutation die Merkmale einzelne Individuen zufällig verändert, um neue Kombinationen zu erzeugen und damit den Suchraum vollständig abdecken zu können. In einem letzten Schritt wird die nächste Generation durch ein geeignetes Auswahlverfahren zusammengestellt. Die neuen Individuen ersetzen dabei Individuen aus der vorherigen Generation. Durch den wahrscheinlicheren Fortbestand von Individuen (Punkten) mit gutem Fitness- oder Zielfunktionswert entwickelt sich die Population Generation für Generation in Richtung Optimum.

Der Algorithmus des Optimierungsprogramms CMA-ES lässt sich laut HANSEN & OSTERMEIER 2001 der Untergruppe der Evolutionsstrategien zuordnen, für die die Veränderung der Population vorwiegend durch Mutation vorangetrieben wird [WEICKER 2015]. Die Startpopulation wird von CMA-ES zufällig mithilfe einer Normalverteilung erzeugt. Der zugehörige Mittelwert wird in Form eines Startpunkts vorgegeben, die zugehörige Standardabweichung kann ebenfalls frei gewählt werden (siehe auch Abschnitt 6.3).

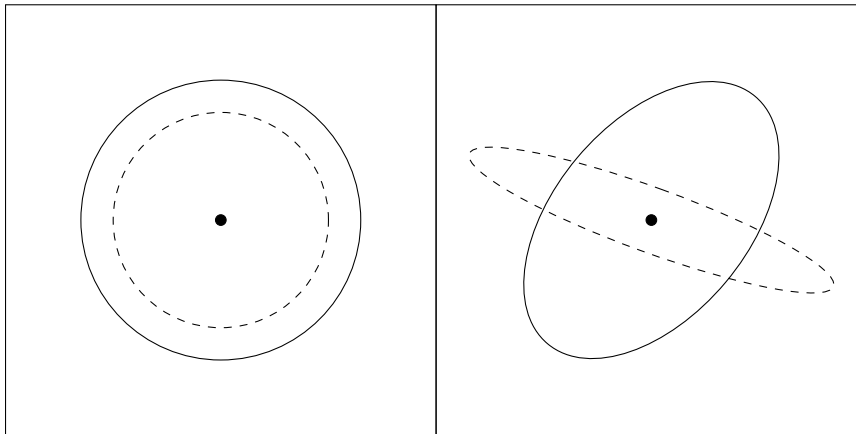
---

<sup>2</sup> Das Optimierungsprogramm CMA-ES wird u.A. als MATLAB .m-Datei direkt von Hansen unter [https://www.lri.fr/~hansen/cmaes\\_inmatlab.html](https://www.lri.fr/~hansen/cmaes_inmatlab.html) zur Verfügung gestellt, abgerufen am 19.7.2017

In den nachfolgenden Iterationen erfolgt die Berechnung der Individuen  $x_i$  für eine neue Generation  $g + 1$  nach HANSEN & OSTERMEIER 2001 dabei dem grundlegenden Schema

$$x_i^{g+1} = \bar{x}^g + \sigma^g z_i^{g+1}. \quad (4.19)$$

Zunächst werden hierfür die besten Individuen (Punkte) der aktuellen Generation  $g$  als Eltern selektiert. Daraus wird der gewichtete Mittelwert  $\bar{x}^g$  der aktuellen Generation  $g$  gebildet, eine einfache Art der Rekombination. Die Mutation dieses Basisindividuums erfolgt durch den zweiten Term in Gleichung (4.19) mit der globalen Schrittweite  $\sigma^g$  als Skalar. Der zugehörige Vektor  $z_i^{g+1}$  von Zufallszahlen wird mithilfe einer geeigneten Normalverteilung ermittelt.



**Abbildung 4.5:** Schematische Darstellung von jeweils zwei zweidimensionalen Normalverteilungen nach HANSEN & OSTERMEIER 2001; 1- $\sigma$  Linien gleicher Wahrscheinlichkeitsdichte um den Mittelwert; links: 1 Parameter, rechts:  $(n^2 + n)/2 = 3$  Parameter

Im einfachsten Fall würden die  $n$  Einträge für ein Individuum unabhängig voneinander mit einer Standardnormalverteilung  $\mathcal{N}(0, 1)$  um den Mittelwert 0 und über eine globale Standardabweichung verändert werden. Dies würde, wie in Abbildung 4.5 dargestellt, zu einer symmetrischen Verteilung im Koordinatensystem führen. Bei CMA-ES wird allerdings eine multivariate Normalverteilung  $\mathcal{N}(0, C^g)$  mit der Kovarianzmatrix  $C^g$  zur Erzeugung von  $z_i^{g+1}$  verwendet. So werden unterschiedlich starke Streuungen in Richtung unterschiedlicher Optimierungsvariablen und eine freie Orientierung der Normalverteilung im Koordinatensystem ermöglicht.

Anschaulich werden durch Gleichung (4.19) neue, zufällig verteilte Individuen  $x_i^{g+1}$  um den Mittelpunkt der besten Individuen in der vorherigen Generation  $g$  gebildet. Diese stellen anschließend die neue Generation  $g + 1$  dar, die Individuen der alten Generation werden verworfen.

Die Form der zugehörigen Normalverteilung  $\mathcal{N}(0, C^g)$  ist entscheidend für den Fortschritt während der Optimierung. CMA-ES passt hierfür die gesamte Kovarianzmatrix  $C^g$  mit  $(n^2 + n)/2$  Parametern für  $n$  Optimierungsvariablen kontinuierlich an.

Durch die große Zahl an Parametern ist allerdings auch eine vergleichsweise große Zahl an Generationen nötig, bis eine sinnvolle Anpassung möglich ist. Für CMA-ES wird daher die globale Schrittweite  $\sigma^g$  in Gleichung (4.19) zur Skalierung der Normalverteilung separat betrachtet und deutlich schneller an das Problem angepasst als die Kovarianzmatrix  $C^g$  [HANSEN & OSTERMEIER 2001].

Darüber hinaus verfolgt CMA-ES das Prinzip der Derandomisierung, durch das die Kovarianzmatrix nicht zufällig, sondern basierend auf vorherigen Veränderungen angepasst wird. So können indirekt Informationen aus vorherigen Iterationen genutzt werden; die Funktion der Kovarianzmatrix wird daher von HANSEN & OSTERMEIER 2001 auch mit der der genäherten Hesse-Matrix in Quasi-Newton Verfahren verglichen (siehe Abschnitt 4.2.1). Ein weiteres Prinzip ist die Kumulation, die mehrere vergangener Schritte, den sogenannte Evolutionspfad, bei der Weiterentwicklung der Population berücksichtigt.

CMA-ES unterstützt untere und obere Grenzen für die Optimierungsvariablen. Für die übrigen Nebenbedingungen in Gleichung (4.1) wird von HANSEN & OSTERMEIER 2001 empfohlen, im Fall der Verletzung einen Fehler zurückzugeben. Laut Aussage von HANSEN & OSTERMEIER 2001 sollten allerdings andere Strategien zum Einsatz kommen, falls die Nebenbedingung am Optimum aktiv ist. NOCEDAL & WRIGHT 2006 führt hierfür unter anderem die nicht differenzierbare aber exakte Straffunktion  $f_{\text{CMA-ES}}(x)$  an:

$$f_{\text{CMA-ES}}(x) = f(x) + \mu \sum_{i=1}^I [g_i(x)]_+ + \mu \sum_{j=1}^J |h_j(x)|. \quad (4.20)$$

Die Zielfunktion und Nebenbedingungen in Gleichung (4.1) werden dadurch vollständig durch die neue Ziel- bzw. Fitnessfunktion  $f_{\text{CMA-ES}}(x)$  ersetzt. Es resultiert ein bis auf die Grenzen der Optimierungsvariablen unbeschränktes Problem, das im Rahmen dieser Arbeit für die Anwendung von CMA-ES genutzt wird.

Der Strafparameter  $\mu$  in Gleichung (4.20) ist so groß zu wählen, dass die Einhaltung der Nebenbedingungen Vorrang vor der Verbesserung von  $f_{\text{CMA-ES}}(x)$  hat. Nur dann ist  $f_{\text{CMA-ES}}(x)$  exakt, d. h. das Optimum von  $f_{\text{CMA-ES}}(x)$  auch ein Optimum des ursprünglichen Problems. Der Strafparameter  $\mu$  wurde richtig gewählt, wenn das gefundene Optimum keine Verletzung der Nebenbedingungen aufweist und  $f_{\text{CMA-ES}}(x)$  damit an dieser Stelle in die eigentliche Zielfunktion  $f(x)$  übergeht.

Generell ergeben sich bei der Nutzung von CMA-ES durch die indirekte Berücksichtigung der Nebenbedingungen zwei Nachteile. Zum einen ist die Einbindung der Nebenbedingungen auf verschiedene Arten möglich, die unterschiedlich mit dem CMA-ES Algorithmus wechselwirken können. Eine auf den Algorithmus zugeschnittene Lösung als Teil von CMA-ES wäre hier sinnvoll. Zum anderen gehen in dem hier gewählten Strafterm durch Summation die jeweiligen einzelnen Werte der Nebenbedingungen als Zusatzinformation für die Optimierung verloren. Dies könnte die Optimierungsaufgabe für das Optimierungsprogramm zusätzlich erschweren.

**GA** Das Optimierungsprogramm GA basiert auf einem genetischen Algorithmus, einer Untergruppe der evolutionären Algorithmen. Die allgemeinen Erläuterungen zu den Grundschritten Selektion, Rekombination und Mutation aus dem vorherigen Abschnitt gelten daher auch hier. Bei genetischen Algorithmen wird die Population laut WEICKER 2015 vor allem durch Rekombination weiterentwickelt. Die Mutation kommt untergeordnet zum Einsatz und stellt nur eine Ergänzung des Verfahrens dar, das einen geeigneten mittleren Abstand der Individuen, die sogenannte Diversität, in der Population erhält. Für GA können eine Reihe von Optionen gewählt werden. Im Folgenden wird der Ablauf einer Iteration für die im Rahmen dieser Arbeit gewählten Einstellungen erläutert (siehe auch Abschnitt 6.3).

Die Anfangspopulation wird zufällig anhand der gegebenen unteren und oberen Grenzen der Optimierungsvariablen generiert. Als Besonderheit muss für das Optimierungsprogramm GA daher kein Startpunkt spezifiziert werden.

Für die Individuen werden anschließend in jeder weiteren Iteration die zugehörigen Fitnesswerte ermittelt, die Individuen entsprechend sortiert und anhand dessen einem Rang  $r$  zugeordnet. Anschließend werden die Fitnesswerte in der Standardeinstellung durch den Funktionswert

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{r}} \quad (4.21)$$

ersetzt. Auf diese Weise wird eine skalierte, gleichmäßige und einfacher weiterzuverarbeitende Abstufung der Fitnesswerte für die Individuen erhalten. Die besten 5 % der Individuen aus der aktuellen Population, die sogenannten Eliten, werden anschließend direkt als Kinder in die nächste Generation übernommen.

Die Selektion der Eltern für die Bildung die nächste Generation findet im sogenannten Turniermodus statt. Bei diesem konkurriert jeweils eine Untergruppe von zufällig gewählten Individuen um die Auswahl als Eltern. In den vorliegenden Fall wird das bessere von jeweils zwei zufällig ausgewählten Individuen für die Elterngeneration verwendet.

Durch die Rekombination der so gewählten Eltern werden 80 % der noch fehlenden Individuen für die neuen Generation erzeugt. Für jedes Merkmal von zwei Individuen wird zufällig der Wert von einem der beiden gewählt und auf das neue Individuum der nächsten Generation übertragen.

Die verbleibenden 20 % der Individuen in der neuen Generation werden durch Mutation der Merkmale einzelner Eltern-Individuen verändert. Dabei kommt ein spezieller adaptiver Algorithmus zum Einsatz. Dieser stellt sicher, dass die Grenzen der Optimierungsvariablen trotz zufälliger Veränderung der Werte eingehalten werden.

Nebenbedingungen werden in GA analog zu Gleichung (4.20) über eine exakte Straffunktion gehandhabt. Allerdings wird dabei für den Zielfunktionswert  $f(x)$  stets der schlechteste Wert aller gültigen Individuen gewählt und nicht der tatsächliche Zielfunktionswert des Individuums das die Nebenbedingungen verletzt. Dieser Ansatz



zur Behandlung von Nebenbedingungen wurde von DEB 2000 entwickelt und benötigt definitionsgemäß keinen Strafparameter  $\mu$ .

### 4.2.3 Lokale und globale Optimierung

Ziel einer Optimierung ist in der Regel das Auffinden des globalen Minimums für das gegebene Problem. Mathematisch kann nach EDGAR et al. 2001 und BIEGLER 2010 nur für konvexe Zielfunktionen mit konvexen Gültigkeitsbereichen gezeigt werden, dass ein gefundenes lokales Minimum auch zwangsläufig das globale Minimum des Optimierungsproblems darstellt. Nichtlineare Optimierungsprobleme können diese Voraussetzung jedoch häufig nicht erfüllen und/oder eine Überprüfung auf Konvexität ist nicht einfach möglich. Daher kann nicht mit Sicherheit festgestellt werden, ob es sich bei einem gefundenen Minimum tatsächlich um das gesuchte globale Minimum handelt.

Sogenannte lokale Optimierungsprogramme wie `fmincon`, `IPOPT` und `COBYLA` konvergieren typischerweise ausgehend von einem Startpunkt zu einem lokalen Minimum des Optimierungsproblems [NOCEDAL & WRIGHT 2006]. Der mehrfache Aufruf von unterschiedlichen Startpunkten ist eine Möglichkeit diese Optimierungsprogramme als globales Verfahren zu nutzen [EDGAR et al. 2001].

Optimierungsprogramme wie `CMA-ES` und `GA` konvergieren unter anderem durch die Entwicklung einer im Suchraum verteilten Population besser zu globalen Minima und werden daher als globale Verfahren bezeichnet.

Im Rahmen dieser Arbeit werden sowohl lokale als auch globale Optimierungsprogramme eingesetzt. Auf eine explizite Unterscheidung wird jedoch im Folgenden verzichtet, da die lokalen Optimierungsprogramme in Verbindung mit der durchgeführten Startwertvariation auch als globale Verfahren betrachtet werden können.

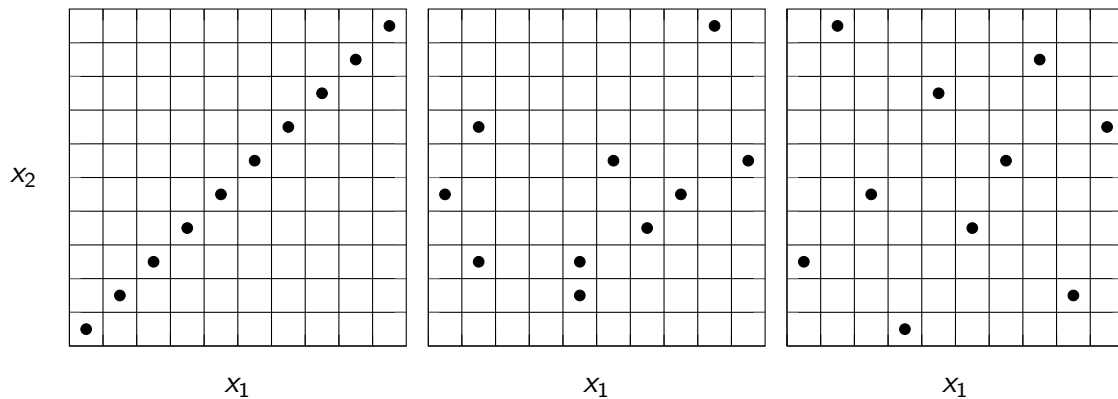
### 4.2.4 Methodik für die Evaluierung

Die in den vorherigen Abschnitten beschriebenen Optimierungsprogramme sollen bezüglich ihrer Leistungsfähigkeit bei der Prozessoptimierung evaluiert und verglichen werden. Hierfür werden zunächst die für die Prozessoptimierung verwendeten Startpunkte festgelegt, bevor die Kriterien zur Evaluierung beschrieben werden.

**Betrachtete Startpunkte** Um die Startwertabhängigkeit der Optimierungsprogramme zu prüfen, werden jeweils 10 Startpunkte (SP) für die betrachteten Optimierungsprobleme definiert. Zudem wird die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse durch 5 Wiederholungen des gleichen Startpunkts  $x_0$  geprüft. Es ergeben sich so insgesamt 50 Prozessoptimierungen pro Optimierungsproblem und Optimierungsprogramm. Für das Optimierungsprogramm `GA` ist per Definition keine Startwertvorgabe vorgesehen (siehe

Abschnitt 4.2.2), daher entfällt hier die Untersuchung auf Startwertabhängigkeit und es werden nur 5 Wiederholungen pro Optimierungsproblem betrachtet.

Die Optimierungsvariablen (OV) werden vor der eigentlichen Optimierung auf den Wertebereich von 0 bis 1 skaliert (siehe auch Abschnitt 6.1). Die Startpunkte SP1 bis SP5 werden intuitiv linear zwischen diesen Grenzen in Schritten von 0.2 generiert, d. h. 0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8 und 1. Sämtliche Optimierungsvariablen OV nehmen, wie in Tabelle 4.2 dargestellt, für diese Startpunkte SP jeweils den gleichen Wert an (siehe Abbildung 4.6 links).



**Abbildung 4.6:** Schematische Darstellung zur Wahl der Startpunkte für ein zweidimensionales Problem; links: linear ansteigende Werte, Mitte: zufällige Wahl der Werte, rechts: Bestimmung der Startpunkte mittels Latin Hypercube Sampling (LHS)

Um den übrigen Raum abzudecken, könnte intuitiv ein Raster aus den Optimierungsvariablen aufgespannt und Punkt für Punkt für die Prozessoptimierung verwendet werden. Selbst für vergleichsweise einfache Optimierungsprobleme mit 10 Optimierungsvariablen und 3 Werten pro Optimierungsvariable führt dies allerdings zu insgesamt  $3^{10} = 59049$  Prozessoptimierungen.

Um den Zeitbedarf in einem sinnvollen Rahmen zu halten, werden hier nur 5 weitere Startpunkte (SP6 bis SP10) betrachtet. Eine zufällige Verteilung der Werte bei einer kleinen Stichprobe würde in der Regel zur Häufung bestimmter Wertebereiche und einer ungleichmäßigen Verteilung führen (siehe Abbildung 4.6 Mitte). Die Startpunkte SP6 bis SP10 werden daher mittels Latin Hypercube Sampling (LHS) bestimmt. Dieser von MCKAY et al. 1979 beschriebene Ansatz eignet sich zur effektiven Auswahl von kleinen Stichproben. Der Wertebereich jeder Optimierungsvariable wird hierfür in 5 gleich große Abschnitte eingeteilt. Jeder dieser Abschnitte wird von den ebenfalls 5 Startpunkten exakt einmal gewählt, um den Wert der Optimierungsvariable zu festzulegen. Die Startpunkte SP1 bis SP5 entsprechen im Grunde diesem Prinzip, allerdings liegt dort eine ausgeprägte Korrelation zwischen den Werten vor. Für das hier verwendete LHS wird die Stichprobe durch ein iteratives Verfahren zur Maximierung des Abstands der Punkte verbessert (siehe Abbildung 4.6 rechts). Die Startpunkte SP6 bis SP10 werden in MATLAB so mit der Funktion `lhsdesign` und  $10^4$  Iterationen ermittelt. Zudem wird für die 5 Abschnitte im Wertebereich der Optimierungsvariablen jeweils der Mittelpunkt

**Tabelle 4.2:** Startpunkte SP und zugehörige Werte der Optimierungsvariablen OV.

	SP1	SP2	SP3	SP4	SP5	SP6	SP7	SP8	SP9	SP10
OV1	0	0.25	0.5	0.75	1	0.5	0.7	0.9	0.3	0.1
OV2	0	0.25	0.5	0.75	1	0.3	0.5	0.9	0.7	0.1
OV3	0	0.25	0.5	0.75	1	0.7	0.1	0.5	0.9	0.3
OV4	0	0.25	0.5	0.75	1	0.9	0.1	0.7	0.3	0.5
OV5	0	0.25	0.5	0.75	1	0.3	0.7	0.1	0.9	0.5
OV6	0	0.25	0.5	0.75	1	0.5	0.1	0.7	0.3	0.9
OV7	0	0.25	0.5	0.75	1	0.3	0.9	0.1	0.5	0.7
OV8	0	0.25	0.5	0.75	1	0.5	0.1	0.3	0.7	0.9
OV9	0	0.25	0.5	0.75	1	0.9	0.7	0.3	0.5	0.1
OV10	0	0.25	0.5	0.75	1	0.5	0.1	0.7	0.9	0.3
OV11	0	0.25	0.5	0.75	1	0.9	0.3	0.5	0.1	0.7
OV12	0	0.25	0.5	0.75	1	0.1	0.3	0.7	0.9	0.5
OV13	0	0.25	0.5	0.75	1	0.3	0.7	0.9	0.5	0.1
OV14	0	0.25	0.5	0.75	1	0.9	0.1	0.3	0.5	0.7
OV15	0	0.25	0.5	0.75	1	0.3	0.5	0.9	0.1	0.7
OV16	0	0.25	0.5	0.75	1	0.1	0.3	0.5	0.7	0.9
OV17	0	0.25	0.5	0.75	1	0.3	0.7	0.9	0.1	0.5
OV18	0	0.25	0.5	0.75	1	0.1	0.7	0.5	0.3	0.9
OV19	0	0.25	0.5	0.75	1	0.7	0.9	0.3	0.1	0.5

des Bereichs als Wert gewählt. Für die von 0 bis 1 skalierten Optimierungsvariablen in Tabelle 4.2 sind damit die Werte 0.1, 0.3, 0.5, 0.7 und 0.9 möglich.

Im Rahmen dieser Arbeit werden maximal 19 Optimierungsvariablen OV betrachtet und entsprechend viele Werte für jeden Startpunkt SP generiert. Treten in einem Optimierungsproblem weniger Optimierungsvariablen auf, wird für einen Startpunkt SP ausgehend von OV1 nur die tatsächlich benötigte Zahl an Werten aus Tabelle 4.2 bereitgestellt.

**Kriterien** Als wichtigste Kriterien für die Evaluierung dienen

- die benötigte Zeit  $t$ ,
- die Zahl der benötigten Simulationsaufrufe  $n_{\text{Sim}}$ ,
- der Anteil gültiger und guter Lösungen  $\varphi_{\text{gültig}}$  bzw.  $\varphi_{\text{gut}}$  und
- die erreichte Kaltgaseffizienz  $\eta_{\text{KG}}$

für eine Lösung. Eine Unterscheidung zwischen der Zeit  $t$  und der Zahl der Simulationsaufrufe  $n_{\text{Sim}}$  ist notwendig, da die verwendete Schrittweite  $\Delta x_{\text{Sim}}$  zwischen zwei

Simulationsaufrufen die benötigte Zeit für die Lösung der Simulation beeinflussen kann. Als Zeit  $t$  wird dabei die Gesamtzeit zur Optimierung betrachtet, d. h. die tatsächliche Zeit die von MATLAB und dem Prozesssimulator zusammen benötigt wird.

Die Schrittweite  $\Delta x_{\text{Sim}}$  zwischen zwei Simulationsaufrufen an den  $n$ -dimensionalen Punkten  $x^{(1)}$  und  $x^{(2)}$  wird durch den euklidischen Abstand beschrieben:

$$\Delta x_{\text{Sim}} = \|x^{(2)} - x^{(1)}\|_2 = \sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i^{(2)} - x_i^{(1)})^2}. \quad (4.22)$$

Für  $n$ -dimensionale Vektoren  $x$  mit Werten zwischen 0 und 1 ergibt sich damit eine Maximalschrittweite  $\sqrt{n} \geq 1$ .

Die Zahl der benötigten Simulationsaufrufe  $n_{\text{Sim}}$  sowie die Zeit  $t$  wird jedes Optimierungsprogramm und jedes Optimierungsproblem als arithmetisches Mittel  $\bar{n}_{\text{Sim}}$  bzw.  $\bar{t}$  über alle erhaltenen Lösungen dargestellt. Zudem werden die zugehörigen relativen Standardabweichungen ermittelt.

Die Anteile der gültigen und guten Lösungen  $\varphi_{\text{gültig}}$  bzw.  $\varphi_{\text{gut}}$  beschreiben die Zuverlässigkeit des Optimierungsprogramms. Eine gültige Lösung hält dabei die Nebenbedingungen an dem gefundenen Punkt ein. Hierfür ist eine maximale absolute Verletzung der Nebenbedingungen von 0.1 erlaubt. Eine gute Lösung erreicht zusätzlich mindestens 99.9% des global besten Zielfunktionswerts für das betrachtete Optimierungsproblem.

Eine gefundene Lösung bzw. Prozesskonfiguration wird, wie in Kapitel 5 beschrieben, anhand der erreichten Kaltgaseffizienz  $\eta_{\text{KG}}$  beurteilt. Für diese wird ebenfalls das arithmetische Mittel  $\bar{\eta}_{\text{KG}}$  bestimmt. Aufgrund der Vergleichbarkeit werden hierfür nur gültige Lösungen berücksichtigt. Die Kaltgaseffizienz  $\eta_{\text{KG}}$  und deren Streuung ist nach oben hin durch den besten gefundenen Wert bzw. das tatsächliche Optimum der Prozessoptimierung begrenzt. Die Standardabweichung ist daher hier kein sinnvolles Kriterium für die Evaluierung, stattdessen wird die jeweils beste erreichte Zielfunktionswert Kaltgaseffizienz  $\eta_{\text{KG,beste}}$  dargestellt.

Ein abgeleitetes Bewertungskriterium ist die im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung, die sich aus dem Mittelwert der Zeit für eine Lösung dividiert durch den Anteil der guten Lösungen  $\varphi_{\text{gut}}$  ergibt:

$$\bar{t}_{\text{gut}} = \frac{\bar{t}}{\varphi_{\text{gut}}}. \quad (4.23)$$

Für die guten Lösungen wird der Anteil der unnötigen Simulationsaufrufe  $\chi_{\text{gut,unnötig}}$  ermittelt, die in einem Optimierungslauf mit guter Lösung über die 99.9% des global besten Zielfunktionswerts hinaus gehen.

Für alle Optimierungsläufe wird der Anteil der Lösungen  $\varphi_{\text{Fehler}}$  und Simulationsaufrufe  $\chi_{\text{Fehler}}$  ermittelt, für die die Simulation Fehler aufweist und ein Ersatzwert zurückgegeben wird (siehe Abschnitt 6.2.3).

## 4.3 Numerische Näherung der Gradienten

Für den Einsatz gradientenbasierter Optimierungsalgorithmen sind die Gradienten von Zielfunktion und Nebenbedingungen erforderlich. Allgemein kann diese Information für ein bekanntes analytisches Gleichungssystem durch symbolische Differenziation oder für einen vollständig offenen Programmcode durch automatische Differenziation erhalten werden [NOCEDAL & WRIGHT 2006]. Im Rahmen dieser Arbeit wird allerdings ein Black-Box Problem behandelt. Die partiellen Ableitungen können hier näherungsweise durch numerische Differenziation mit im nächsten Abschnitt vorgestellten Differenzenquotienten bestimmt werden. Die Genauigkeit der so erhaltenen Gradienten beeinflusst laut BIEGLER 2010 in großem Maß die erfolgreiche Konvergenz der gradientenbasierten Optimierungsprogramme und wird daher im Anschluss detailliert betrachtet.

### 4.3.1 Ansatz

Für die numerische Differenziation mittels Differenzenquotienten werden meist die von GILL et al. 1981 beschriebenen Beziehungen verwendet, die im Folgenden für eine Funktion  $f(x)$  einer Variablen dargestellt sind. Grundlage ist die Auswertung der Funktion  $f(x)$  an dem Punkt  $x$  und einem um die Schrittweite  $h$  entfernten Punkt.

Für die Näherung der ersten Ableitung  $f'(x)$  mit dem vorwärtsgerichteten Differenzenquotienten (engl. forward-difference approximation) ergibt sich

$$f'(x) \approx f'_v(x) = \frac{f(x+h) - f(x)}{h}. \quad (4.24)$$

Mit dem zentralen Differenzenquotient (engl. central-difference approximation) lässt sich schreiben

$$f'(x) \approx f'_z(x) = \frac{f(x+h) - f(x-h)}{2h}. \quad (4.25)$$

Zur Näherung der zweiten Ableitung  $f''(x)$  kann der Differenzenquotient formuliert werden als

$$f''(x) \approx \frac{f(x+h) - 2f(x) + f(x-h)}{h^2}. \quad (4.26)$$

Für eine Funktion  $f(x)$ , bei der sich der Vektor  $x$  aus  $n$  Variablen zusammensetzt, werden mit dem vorwärtsgerichteten Differenzenquotienten  $n + 1$  Funktionsaufrufe zur Bestimmung des Gradienten benötigt. Mit dem zentralen Differenzenquotienten sind hierfür  $2n + 1$  Funktionsaufrufe nötig.

### 4.3.2 Genauigkeit

Für den Fall einer linearen und exakt berechenbaren Funktion  $f(x)$  geben die Gleichungen (4.24) und (4.25) die tatsächliche Ableitung korrekt wieder. In der Praxis ist die mit Differenzenquotienten bestimmte Ableitung  $f'(x)$  nach GILL et al. 1983 vor allem aus zwei Gründen fehlerbehaftet. Durch die Wahl der Schrittweite  $h$  kann der Fehler allerdings beeinflusst werden.

#### Systematischer Fehler

Im Fall einer nichtlinearen Funktion verfälschen die nichtlinearen Anteile das erhaltene Ergebnis systematisch. In den Differenzenquotienten wird die Funktionsänderung von  $f(x)$  mit der gewählten Schrittweite  $h$  vollständig dem Einfluss und damit dem Wert der ersten Ableitung  $f'(x)$  zugeschrieben. Der Beitrag der nichtlinearen Anteile geht somit als Fehler mit in den Wert des Differenzenquotienten für  $f'(x)$  ein.

Die Größe des systematischen Fehlers liegt nach GILL et al. 1981 für vorwärtsgerichtete und zentrale Differenzenquotienten in der Größenordnung von  $h$  bzw.  $h^2$ . Dadurch kann dieser Fehler durch kleinere Schrittweiten  $h$  für exakt berechenbare Funktionen beliebig klein gehalten werden. Für den zentralen Differenzenquotienten bewirkt die quadratische Ordnung des Fehlers dabei tendenziell eine größere Abnahme für kleiner werdende Schrittweiten  $h$ . Die erhöhte Genauigkeit des zentralen Differenzenquotienten wird allerdings durch zusätzliche Funktionsaufrufe erkauft.

#### Statistischer Fehler

Obwohl sich der Wert des Differenzenquotienten mit kleinerer Schrittweite  $h$  dem tatsächlichen Wert der Ableitung annähert, ist die Schrittweite  $h$  praktisch durch den numerischen Fehler der Funktion  $f(x)$  nach unten hin begrenzt. Mit einer kleineren Schrittweite  $h$  verringert sich die absolute Differenz im Zähler des Differenzenquotienten in Gleichungen (4.24) und (4.25) und ist so stärker durch den numerischen Fehler der Funktion  $f(x)$  beeinflusst. Die Näherung der Ableitung ist daher für eine abnehmende Schrittweite  $h$  mit einem steigenden statistischen Fehler behaftet.

Der numerische Fehler der Funktion  $f(x)$  ergibt sich für die Rechnung mit Gleitkommazahlen allein durch die Rundung auf die begrenzte Zahl an Stellen. So beträgt relative Fehler  $\varepsilon_{\text{rel}}$  für Gleitkommazahlen doppelter Genauigkeit

$$\varepsilon_{\text{rel}} = 2.2 \cdot 10^{-16}. \quad (4.27)$$

Der relative Fehler  $\varepsilon_{\text{rel}}$  fällt entsprechend größer aus, wenn die Berechnung der Funktion  $f(x)$  auf einer Verkettung fehlerbehafteter numerischer Operationen beruht.

Um den statistischen Fehler der numerischen Ableitung zu verkleinern, sollte eine möglichst große Schrittweite  $h$  gewählt werden. Für den Sonderfall einer linearen Funktion  $f(x)$  kann die Schrittweite  $h$  sogar beliebig groß gewählt werden. Dies steht

im Widerspruch zu dem zuvor beschriebenen systematischen Fehler, der für eine größere Schrittweite zu einem steigenden Fehler in der Näherung der lokalen Ableitung führt.

### Wahl der Schrittweite

Für eine möglichst genaue Näherung der Ableitung ist eine mittlere Schrittweite zwischen den beiden Grenzfällen zu wählen. Laut GILL et al. 1983 und NOCEDAL & WRIGHT 2006 kann häufig beobachtet werden, dass die beste Schrittweite für vorwärts gerichtete Differenzenquotienten in der Größenordnung

$$h = \sqrt{\varepsilon_{\text{rel}}} \quad (4.28)$$

und für zentrale Differenzenquotienten in der Größenordnung

$$h = \sqrt[3]{\varepsilon_{\text{rel}}} \quad (4.29)$$

liegt. Für die Näherung der zweiten Ableitung wird von GILL et al. 1983

$$h = \sqrt[4]{\varepsilon_{\text{rel}}} \quad (4.30)$$

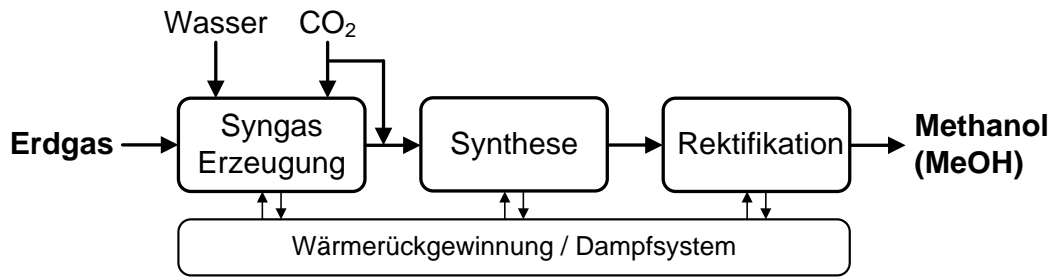
als Richtwert angegeben.

Von GILL et al. 1983 werden auch exakte Berechnungsmethoden und ein Algorithmus zur Bestimmung der optimalen Schrittweite gezeigt. Hierfür muss der relative Fehler  $\varepsilon_{\text{rel}}$  vorgegeben werden, mit der numerisch angenäherten zweiten Ableitung kann dann eine optimale Schrittweite  $h$  geschätzt werden. Hierfür sind allerdings zusätzliche Funktionsaufrufe nötig. Zudem ist die optimale Schrittweite für Zielfunktion und Nebenbedingungen unter Umständen unterschiedlich und der optimale Wert verändert sich zudem im Lauf der Optimierung.

## 4.4 Methanolsynthese

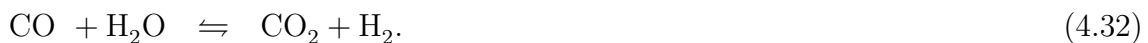
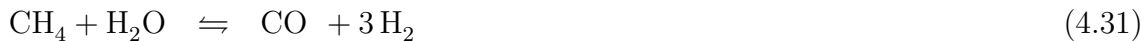
Im Rahmen dieser Arbeit wird die Methanolsynthese als Prozessbeispiel betrachtet. Die großindustrielle Herstellung von Methanol (MeOH) aus Erdgas kann in die drei in Abbildung 4.7 dargestellten Prozessabschnitte Synthesegaserzeugung, Synthese und Rektifikation unterteilt werden, die im Gesamtprozess über das Dampfsystem miteinander gekoppelt sind. Eine detaillierte Beschreibung des verwendeten Prozessmodells erfolgt in Kapitel 5.

**Synthesegaserzeugung** Im ersten Prozessabschnitt erfolgt eine Umwandlung des Erdgases ( $\text{CH}_4$ ) in Synthesegas, einer Mischung aus Wasserstoff ( $\text{H}_2$ ), Kohlenstoffmonoxid ( $\text{CO}$ ) und Kohlenstoffdioxid ( $\text{CO}_2$ ). Hier wird die Dampfreformierung mit  $\text{CO}_2$ -Import betrachtet, da diese große Flexibilität und zahlreiche Freiheitsgrade für die



**Abbildung 4.7:** Blockfließbild des Gesamtprozesses zur Methanolsynthese.

Optimierung bietet. Der Umsatz von Erdgas erfolgt durch die Zugabe von Wasserdampf ( $\text{H}_2\text{O}$ ) und optional  $\text{CO}_2$  bei einer Temperatur von bis zu  $950^\circ\text{C}$  und einem Druck von bis zu 30 bar unter Anwesenheit eines Nickelkatalysators [OTT et al. 2012]. Die Bereitstellung der Wärme für die stark endotherme Reaktion erfolgt durch externe Befuerung der Reformerrohre. Die Hauptgleichgewichtsreaktionen sind dabei



Gleichung (4.31) stellt die stark endotherme Dampfreformierungsreaktion, Gleichung (4.32) die schwach exotherme Wassergas-Shift-Reaktion dar. Nach der Reaktion wird das Produktgemisch abgekühlt und so das überstöchiometrisch zugegebene  $\text{H}_2\text{O}$  fast vollständig aus dem Synthesegas abgeschieden. Vor dem zweiten Prozessabschnitt, der Synthese, kann gegebenenfalls weiteres  $\text{CO}_2$  zugegeben werden, um die Zusammensetzung des erhaltenen Synthesegases anzupassen.

**Synthese** Vor der Synthese wird das Synthesegas auf den gewünschten Synthesedruck verdichtet und dem Reaktor für die Methanolsynthese zugeführt. Der Reaktor wird nach OTT et al. 2012 industriell als Rohrbündelreaktor ausgeführt, bei der ein kupferhaltiger Katalysator auf der Rohrrinnenseite für die exotherme Umsetzung zu Methanol ( $\text{MeOH}$ ) sorgt. Die Kühlung erfolgt durch siedendes Wasser auf der Rohraußenseite, über dessen Druck die gewünschte Kühltemperatur eingestellt wird. Die Reaktion erfolgt typischerweise bei einer Temperatur von  $200 - 300^\circ\text{C}$  und einem Druck von  $50 - 100$  bar [OTT et al. 2012]. Sowohl  $\text{CO}$  als auch  $\text{CO}_2$  lassen sich dabei zu Methanol umsetzen. Die Gleichgewichtsreaktion zu Methanol und die auch hier parallel ablaufende Wassergas-Shift-Reaktion lassen sich schreiben als



Die Wassergas-Shift-Reaktion nach Gleichung (4.34) ermöglicht dem Reaktionssystem einen Umsatz von  $\text{CO}_2$  zu Methanol und ist formal identisch mit der in Gleichung (4.32) definierten Reaktion. Die hier insgesamt erreichbare Ausbeute an Methanol ist stark durch das thermodynamische Gleichgewicht limitiert.



Aus dem Reaktoraustrittstrom wird durch partielle Kondensation das sogenannte Rohmethanol, ein Gemisch aus überwiegend MeOH und H<sub>2</sub>O, gewonnen. Nicht reagiertes Synthesegas wird nach Abscheidung des Rohmethanols rückverdichtet und zurück in den Reaktor gefahren. Um eine Anreicherung von inerten Komponenten oder überstöchiometrisch zugegebenen Komponenten zu verhindern, muss allerdings ein kleiner Teil als Purge abgeführt werden.

Die Stöchiometrie des zugeführten Synthesegases kann nach APPL 1997 und OTT et al. 2012 mithilfe der sogenannten Stöchiometriezahl

$$SN = \frac{y_{\text{H}_2} - y_{\text{CO}_2}}{y_{\text{CO}} + y_{\text{CO}_2}} \quad (4.35)$$

über die Molanteile  $y$  von H<sub>2</sub>, CO und CO<sub>2</sub> charakterisiert werden. Ein für die Methanolsynthese stöchiometrisches Sythesegas weist die Stöchiometriezahl  $SN = 2$  auf. Für Werte  $SN > 2$  liegt ein Überschuss an H<sub>2</sub> vor, für Werte  $SN < 2$  ein Überschuss an kohlenstoffhaltigen Komponenten. Laut OTT et al. 2012 liegt das Optimum hier bei einem Wert von etwas über 2.

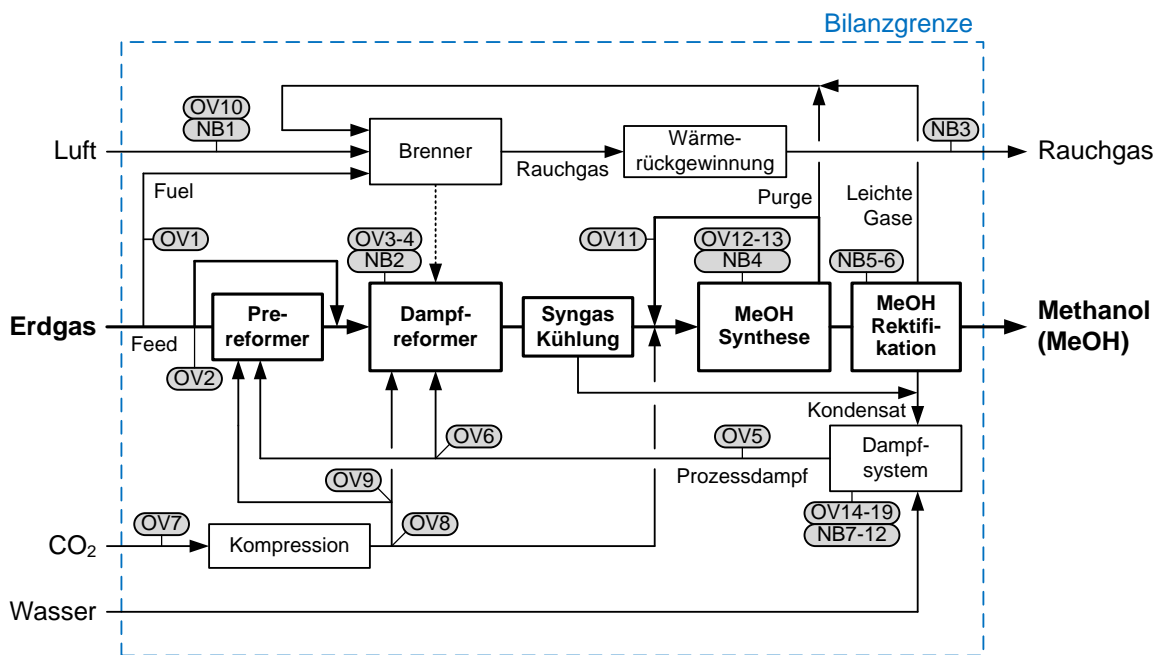
Gleichung (4.35) und der stöchiometrische Wert  $SN = 2$  sind abgeleitet aus dem Verhältnis von  $\frac{y_{\text{H}_2}}{y_{\text{CO}}} = 2$  in Gleichung (4.33). Eventuell vorhandenes CO<sub>2</sub> kann nach Gleichung (4.34) mit zusätzlichem H<sub>2</sub> zu CO umgesetzt werden. Daher wird der verfügbare H<sub>2</sub>-Gehalt  $y_{\text{H}_2}$  im Zähler von Gleichung (4.35) entsprechend dem CO<sub>2</sub>-Gehalt  $y_{\text{CO}_2}$  erniedrigt. In gleichem Maß wird dadurch das verfügbare  $y_{\text{CO}}$  im Nenner erhöht.

**Rektifikation** Das in der Synthese erhaltene Rohmethanol wird im dritten Prozessabschnitt getrennt. Nach einer Druckreduzierung geht zunächst der Großteil der noch gelösten leichten Gase in die Gasphase über und kann in einem Abscheider abgetrennt werden. In der nachfolgenden Topping-Kolonne werden die verbleibenden leichten Gase über Kopf von dem Rohmethanol getrennt. Die nachfolgende Hauptkolonne dient zur Gewinnung des Produkts MeOH mit der gewünschten Reinheit und Ausbeute.



# 5 Prozessmodelle und betrachtete Optimierungsprobleme

Die Methanolsynthese wird in drei Detaillierungsstufen (DS) modelliert. Für die DS ergeben sich Prozessmodelle und Optimierungsprobleme mit steigender Komplexität. Die Unterschiede wirken sich dabei zum einen auf die Optimierung selbst, zum anderen auf die optimale Prozesskonfiguration aus. Die steigende Komplexität des Modells orientiert sich dabei an den einzelnen Prozessabschnitten (siehe Abbildung 4.7). Ein detailliertes Blockfließbild des Gesamtprozesses ist in Abbildung 5.1 gezeigt.



**Abbildung 5.1:** Detailliertes Blockfließbild des Gesamtprozesses zur Methanolsynthese mit Optimierungsvariablen OV und Nebenbedingungen NB

Für alle Detaillierungsstufen dient die Kaltgaseffizienz  $\eta_{KG}$  als Grundlage für die Zielfunktion der Prozessoptimierung. Basierend auf den jeweiligen Heizwerten setzt die Kaltgaseffizienz den Energiestrom des Produkts Methanol ins Verhältnis zu dem Energiestrom des eingesetzten Edukts Erdgas:

$$\eta_{KG} = \frac{\dot{M}_{MeOH} H_{i,MeOH}}{\dot{M}_{CH_4} H_{i,CH_4}} \cdot 100\%. \quad (5.1)$$

Der jeweilige Massenstrom wird mit  $\dot{M}$  und der massenbezogene Heizwert mit  $H_i$  bezeichnet. Die Kaltgaseffizienz soll dabei möglichst maximiert werden. Durch diese thermodynamisch motivierte Betrachtung kann die Optimierung ohne eine oft mit Unsicherheiten verbundene Kostenschätzung erfolgen.

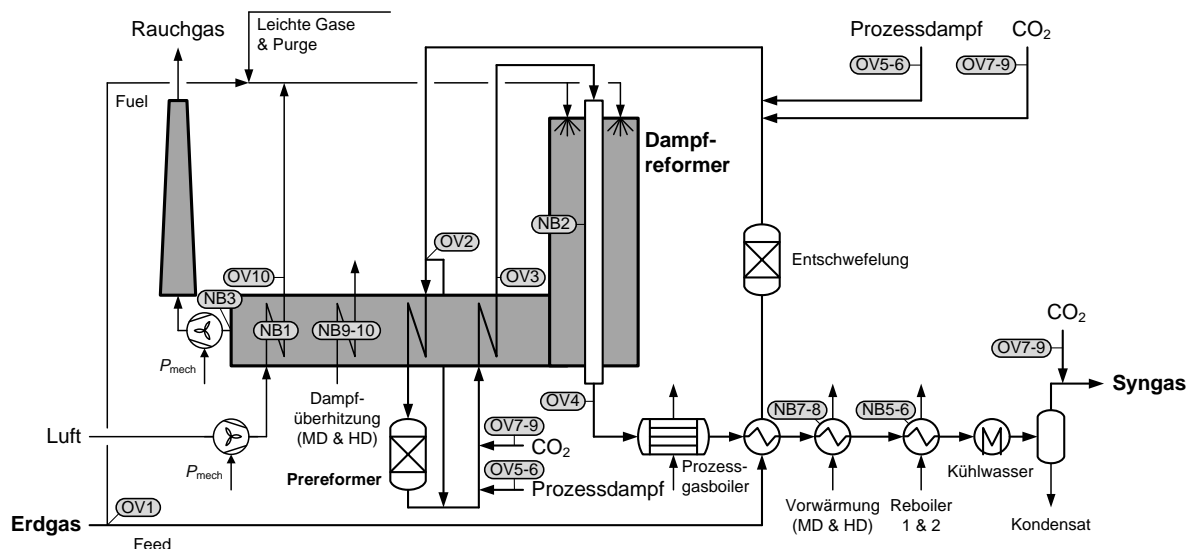
Optimierungsprobleme werden typischerweise als Minimierungsproblem formuliert. Um die Kaltgaseffizienz zu maximieren, wird Gleichung (5.1) daher in modifizierter Form als Zielfunktion eingesetzt:

$$f(x) = -\eta_{KG}. \quad (5.2)$$

Im Folgenden werden die drei aufeinander aufbauenden Detaillierungsstufen DS1 bis DS3 des Prozesses vorgestellt. Ein zusammenfassender Vergleich schließt das Kapitel ab. Für sämtliche Detaillierungsstufen werden nur die im Folgenden explizit angegebenen Druckverluste berücksichtigt. Um die Austauschfläche für Wärmeübertrager sinnvoll zu begrenzen wird zudem in Anlehnung an SEIDER et al. 1999 stets eine minimale Temperaturdifferenz von  $\Delta T_{\min} \geq 10 \text{ K}$  eingehalten. Sämtliche Verdichter und Pumpen weisen einen isentropen Wirkungsgrad von  $\eta_{is} = 0.75$  auf.

## 5.1 Detaillierungsstufe 1

Detaillierungsstufe 1 (DS1) betrachtet nur die in Abbildung 5.1 gezeigte Synthesegaserzeugung als thermodynamisch limitierend. Der Haupteinfluss auf die Zielfunktion ergibt sich dabei durch die Feuerung des Dampfreformers über den Brenner. Für den Methanolreaktor wird stöchiometrischer Vollumsatz angenommen, die Rektifikation wird durch einen Splitter repräsentiert. Außer für die Feuerung wird die Wärmebilanz und der Bedarf an mechanischer Leistung als intern gedeckt angenommen.



**Abbildung 5.2:** Verfahrensfließbild der Synthesegaserzeugung mit Optimierungsvariablen OV und Nebenbedingungen NB

Das Fließbild der Synthesegaserzeugung ist in Abbildung 5.2 gezeigt. Das zugeführte Erdgas wird als reines Methan ( $\text{CH}_4$ ) bei der Temperatur  $T = 25^\circ\text{C}$  und dem Druck  $p = 25 \text{ bar}$  betrachtet. Ein Anteil von  $0 - 0.3$  des zugeführten Erdgases

(Optimierungsvariable OV1) wird zur Wärmeerzeugung genutzt. Der übrige Teil wird in einem Wärmeübertrager mithilfe von heißem Synthesegas auf  $390\text{ °C}$  für die nicht näher betrachtete und als isotherm angenommene Entschwefelung vorgewärmt. Die Temperatur liegt in dem von REIMERT et al. 2012 genannten Temperaturbereich von  $350 - 400\text{ °C}$  und ergibt sich durch die minimale Temperaturdifferenz  $\Delta T_{\min} = 10\text{ K}$  zu der Synthesegasseite. Dem so vorgewärmten Erdgas kann für die spätere Umsetzung Prozessdampf und  $\text{CO}_2$  zugegeben werden.

Der nachfolgende Prereformer kann über einen Bypass (OV2) umgangen werden. Dies kann als strukturelle Entscheidung interpretiert werden, ob der Prereformer verwendet wird oder nicht. Durch Relaxierung wird diese Entscheidung hier als kontinuierliche Variable abgebildet. Der durch den adiabaten Prereformer geführte Teil des Stroms wird zunächst mit Rauchgas auf  $500\text{ °C}$  vorgewärmt [REIMERT et al. 2012]. Durch die Gleichgewichtsreaktionen (4.31) und (4.32) findet ein partieller Umsatz zu Synthesegas statt. Gleichzeitig wird die Temperatur durch die insgesamt endotherme Umsetzung reduziert. Für die Reaktionen wird eine vollständige Annäherung an das thermodynamische Gleichgewicht angenommen.

Vor dem eigentlichen Dampfreformer kann nochmals eine Zugabe von Prozessdampf und  $\text{CO}_2$  erfolgen. Das Gemisch wird anschließend im Rauchgas auf eine Temperatur von  $500 - 650\text{ °C}$  (OV3) vorgewärmt. Die untere Grenze orientiert sich dabei an der Vorwärmungstemperatur des Prereformers, die obere ist die von REIMERT et al. 2012 genannte Maximaltemperatur. Nach der Vorwärmung wird das Gemisch den extern befeuerten Dampfreformerrohren zugeführt. Die variable Austrittstemperatur des Dampfreformers von  $650 - 950\text{ °C}$  (OV4) beeinflusst dabei maßgeblich den erreichten Umsatz und den benötigten Wärmestrom. Die untere Grenze orientiert sich an der maximalen Eintrittstemperatur, die obere Grenze wird von REIMERT et al. 2012 beschrieben. Für die ablaufenden Gleichgewichtsreaktionen (4.31) und (4.32) wird analog zum Prereformer eine vollständige Annäherung an das thermodynamische Gleichgewicht angenommen. In den Dampfreformerrohren wird ein typischer Druckverlust von  $\Delta p = 3\text{ bar}$  berücksichtigt [REIMERT et al. 2012].

Durch den Prozessgasboiler wird das Synthesegas unter Dampferzeugung auf  $400\text{ °C}$  abgekühlt und in weiteren Wärmeübertragern zur Wärmerückgewinnung genutzt. Da in DS1 die Wärmebilanz und der Bedarf an mechanischer Leistung als intern gedeckt angenommen werden, sind die hierfür in Abbildung 5.2 gezeigten Nebenbedingungen in DS1 noch nicht von Bedeutung. Nach der abschließenden Kühlung auf  $40\text{ °C}$  mit Kühlwasser kann das überschüssige Wasser in einem Abscheider als Kondensat abgezogen werden. Das größtenteils wasserfreie Synthesegas (Syngas) kann zur Anpassung der Stöchiometriezahl an dieser Stelle nochmals mit  $\text{CO}_2$  versetzt werden.

Der an den unterschiedlichen Stellen zugeführte Prozessdampf und das  $\text{CO}_2$  wird, wie in Abbildung 5.1 gezeigt, durch verschiedene Optimierungsvariablen bestimmt. Zunächst wird der dem Prozess insgesamt zugeführte Dampfstrom relativ zu dem zugeführten Kohlenstoffstrom (D/C Verhältnis, OV5) festgelegt. Der Wertebereich von  $D/C = 1 - 3.5$  orientiert sich dabei an dem von REIMERT et al. 2012 genannten Bereich von  $0.65 - 5$ .

Der Prozessdampf wird anschließend auf Dampfreformer und Prereformer aufgeteilt (OV6). Analog dazu ergeben sich die zugeführten Mengen an  $\text{CO}_2$ . Das  $\text{CO}_2/\text{C}$  Verhältnis (OV7) bestimmt die Gesamtmenge, während der Strom auf Synthese und Reformer (OV8) sowie untergeordnet auf Dampfreformer und Prereformer (OV9) aufgeteilt wird. Für die Gesamtmenge von  $\text{CO}_2/\text{C} = 0 - 0.5$  wurde das von REIMERT et al. 2012 beschriebene maximale Wert von 0.8 auf einen konservativeren Wert reduziert.

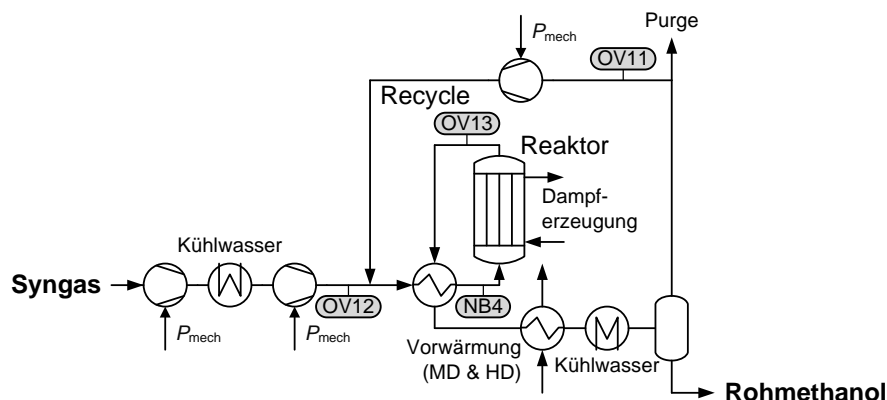
Das in Abbildung 5.2 gezeigte Synthesegas wird für DS1 anschließend stöchiometrisch zu Methanol umgesetzt und das erhaltene Methanol durch einen einfachen Splitter als Produktstrom abgetrennt. Außer  $\text{H}_2\text{O}$  werden sämtliche nicht zu Methanol umsetzbaren Komponenten der Feuerung des Dampfreformers zugeführt. Durch diese thermische Verwertung kann der Erdgas- bzw. Primärenergieverbrauch des Prozesses reduziert werden.

Für die Feuerung wird Luft mit  $25^\circ\text{C}$  und 1.013 bar sowie den Molanteilen  $y_{\text{N}_2} = 0.79$  und  $y_{\text{O}_2} = 0.21$  eingesetzt. Die erforderliche Luftmenge ergibt sich durch eine Luftüberschuss von 5% gegenüber der stöchiometrischen Oxidation, der von STRAUSS 2009 genannten unteren Grenze. Die Förderung erfolgt dabei mithilfe von zwei Gebläsen, die jeweils eine Druckdifferenz  $\Delta p = 50$  mbar überwinden und so die Druckverluste im Rauchgasteil ausgleichen. Die Luft kann durch Wärmerückgewinnung mit Rauchgas auf  $25 - 500^\circ\text{C}$  (OV10) vorgewärmt werden. Die untere Grenze ergibt sich dabei durch die Umgebungstemperatur, die obere wird von HÄUSSINGER et al. 2012b übernommen. Für die Luftvorwärmung ist zudem eine minimale Temperaturdifferenz von  $\Delta T_{\min} \geq 10$  K (Nebenbedingung NB1) einzuhalten. Für die nachfolgende Feuerung der Dampfreformerrohre durch Wärmestrahlung gilt eine minimale Temperaturdifferenz von  $\Delta T_{\min} \geq 140$  K (NB2) zwischen dem austretenden Synthesegas und dem austretenden Rauchgas. Dieser Mindestwert wird von SEIDER et al. 1999 für derartige Feuerungen gefordert. Um die Kondensation von schwefelhaltigen Komponenten im Rauchgas zu verhindern, muss die Temperatur am Austritt nach EFFENBERGER 2000 und SUPP & HILSEBEIN 1985 zudem  $T \geq 150^\circ\text{C}$  betragen (NB3). Die übrigen, bisher nicht erwähnten Wärmeübertrager und zugehörigen Nebenbedingungen im Rauchgasteil in Abbildung 5.2 werden in DS1 noch nicht näher betrachtet.

## 5.2 Detaillierungsstufe 2

Detaillierungsstufe 2 (DS2) berücksichtigt zusätzlich die Gleichgewichtslimitierung der Synthese. Durch den unvollständigen Umsatz der Edukte ergibt sich ein zusätzlicher Einflussfaktor auf die Zielfunktion. Die Rektifikation wird auch hier durch einen Splitter repräsentiert. Außer der Feuerung des Dampfreformers wird die Wärmebilanz und der Bedarf an mechanischer Leistung als intern gedeckt angenommen.

In Abbildung 5.3 ist das Fließbild für die nun detailliert betrachtete Synthese von Methanol gezeigt. Das Synthesegas aus dem Dampfreformer wird in einer zweistufigen Verdichtung mit Zwischenkühlung auf  $45^\circ\text{C}$  mit Kühlwasser auf einen Synthesedruck von  $50 - 81$  bar (OV12) verdichtet. Die untere Grenze stammt dabei von OTT et al.



**Abbildung 5.3:** Verfahrensfliessbild der Synthese von Methanol mit Optimierungsvariablen OV und Nebenbedingungen NB

2012, während für die obere Grenze der größte von KÖNIG & GÖHNA 2000 beschriebene Wert verwendet wird. Zur Reduzierung der Gesamtleistung wird der Zwischendruck so angepasst, dass für beide Verdichterstufen das gleiche Verdichtungsverhältnis vorliegt. Zusammen mit dem Recycle aus noch nicht reagierten Synthesegasbestandteilen und inertem  $\text{CH}_4$  wird das Synthesegas in einem Wärmeübertrager mithilfe des heißen Reaktoraustrittsstroms auf eine Reaktoreintrittstemperatur von  $230^\circ\text{C}$  angewärmt [KÖNIG & GÖHNA 2000]. Das Synthesegas muss als Nebenbedingung eine Stöchiometriezahl  $SN \geq 2$  (NB4) aufweisen. Dies wird von OTT et al. 2012 als Mindestwert angegeben, um die überproportionale Bildung von Nebenprodukten zu verhindern.

Im Reaktor wird das Synthesegas entsprechend den Gleichgewichtsreaktionen (4.33) und (4.34) unter vollständiger Annäherung an das thermodynamische Gleichgewicht umgesetzt. Dabei kann eine Temperatur von  $255 - 280^\circ\text{C}$  (OV13) gewählt werden. Die Temperaturuntergrenze stammt dabei von KÖNIG & GÖHNA 2000. Da sich im Inneren des Reaktors durch die exotherme Reaktion lokale Temperaturspitzen ausbilden können, wurde die von OTT et al. 2012 genannte Temperaturobergrenze von  $300^\circ\text{C}$  für den Reaktorausritt in der Gleichgewichtsbetrachtung auf  $280^\circ\text{C}$  reduziert. Im Reaktor herrscht ein typischer Druckverlust von 2 bar [MÜLLER & BORMANN 2011]. Nach dem Wärmeübertrager zur Vorwärmung des Synthesegases am Reaktoreintritt erfolgt eine weitere Abkühlung zur Wärmerückgewinnung, die in DS2 nicht näher betrachtet wird. Zuletzt erfolgt die Abkühlung auf  $40^\circ\text{C}$  mit Kühlwasser, in einem Abscheider kann das Rohmethanol flüssig abgezogen werden. Dieses enthält neben Methanol noch größere Teile Wasser und eine geringe Menge gelöster Gase.

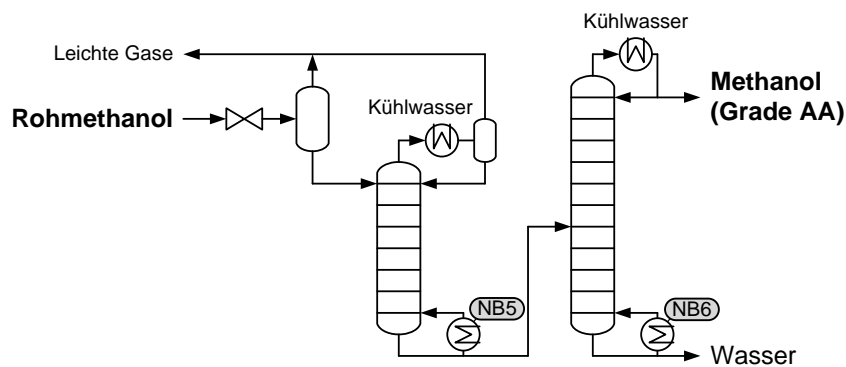
Die Gase aus dem Abscheider werden größtenteils unter Rückverdichtung zurückgeführt. Der Molenstrom an Recycle verglichen mit dem zugeführten Molenstrom an Synthesegas aus dem Dampfreformer wird dabei als Recycle-Verhältnis bezeichnet, für das Werte von  $1 - 4$  (OV11) gewählt werden können. Der von KÖNIG & GÖHNA 2000 genannte Wertebereich wird dabei nach unten hin vergrößert. Der aus dem Prozess abgeführte Purge ergibt sich als Differenz von Recycle und Gesamtstrom aus dem Abscheider.

Der Purge ist zwingend erforderlich, um inerte oder überstöchiometrisch zugegebene Komponenten aus dem Kreislauf zu entfernen.

Aus dem Rohmethanol wird das gewünschte Methanol in DS2 durch einen einfachen Splitter erhalten. Im Rohmethanol gelöste Gase werden dabei gemeinsam mit dem Purge thermisch zur Feuerung des Dampfreformers genutzt.

### 5.3 Detaillierungsstufe 3

Detaillierungsstufe 3 (DS3) bildet zusätzlich die Rektifikation durch rigoros modellierte Kolonnen ab und beinhaltet ein Dampfsystem zur Wärmeintegration des Gesamtprozesses. Neben der Wärmebilanz müssen auch im Prozess benötigte mechanische Leistungen gedeckt werden. Auf diese Weise wird ein vollständig integrierter Gesamtprozess erhalten. Diesem Prozess werden, wie in Abbildung 5.1 gezeigt, als Edukte lediglich Erdgas,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und Luft zugeführt.



**Abbildung 5.4:** Verfahrensfliessbild der Rektifikation mit Nebenbedingungen NB

In Abbildung 5.4 ist die Rektifikation gezeigt. Das Rohmethanol aus der Synthese wird zunächst auf 1.6 bar entspannt, dem von APPL 1997 genannten Druck für die nachfolgende Rektifikation. Dabei geht ein Großteil der gelösten Gase in die Gasphase über und kann im nachfolgenden Abscheider abgetrennt werden.

Die übrigen gelösten Gase, insbesondere  $\text{CO}_2$ , werden in einer nachfolgenden Kolonne aus dem Rohmethanol entfernt. Diese sogenannte Topping-Kolonne wird nach APPL 1997 mit einer realen Gesamtbodenzahl von 40 und einer Einspeisung auf dem 10ten Boden von oben ausgeführt. Für die vorliegende Arbeit zeigten sich zur Modellierung insgesamt 20 Gleichgewichtsstufen (inkl. Reboiler und Kondensator) als ausreichend, das Feed wird entsprechend relativ dazu auf der 5ten Gleichgewichtsstufe von oben zugegeben. Ein Aufdampfverhältnis von 0.15 wird spezifiziert, das in einer Vorstudie als ausreichend groß ermittelt wurde, um das  $\text{CO}_2$  vollständig über Kopf zu entfernen. Für den Kondensator wird für den Betrieb mit Kühlwasser eine Temperatur von  $40^\circ\text{C}$  festgelegt.

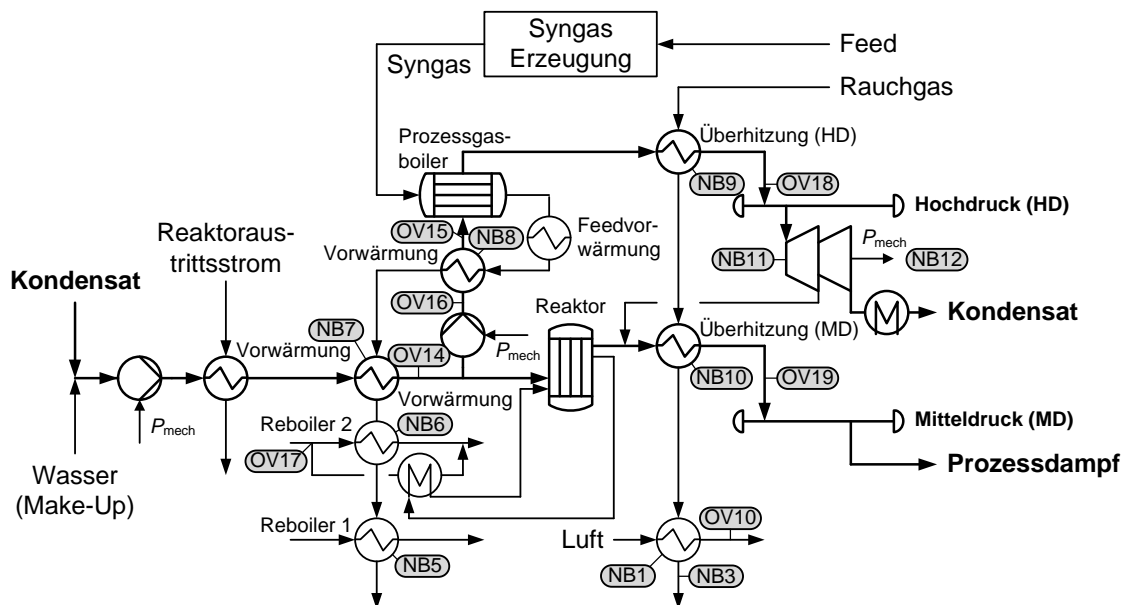
Das binäre Gemisch aus  $\text{MeOH}$  und  $\text{H}_2\text{O}$  wird anschließend der Hauptkolonne zugeführt. Diese wird entsprechend den Angaben von APPL 1997 mit insgesamt 44



Gleichgewichtsstufen (inkl. Reboiler und Kondensator) abgebildet und das Feed auf der 30sten Gleichgewichtsstufe von oben zugegeben. Am Kopf der Kolonne wird Methanol mit einer Reinheit von 99.9 Gew.-% abgezogen. Dies entspricht dem von OTT et al. 2012 beschriebenen AA-Grade Methanol, für das neben einer Mindestreinheit von 99.85 Gew.-% ein maximaler Wasseranteil von 0.1 Gew.-% gefordert wird. Als zweite Spezifikation für die Hauptkolonne wird ein Molanteil  $x_{\text{MeOH}} = 10^{-4}$  im Sumpfprodukt festgelegt [APPL 1997].

Die Reboiler der Topping-Kolonne und der Hauptkolonne werden extern über Wärmeintegration beheizt. Dabei ist jeweils eine minimale Temperaturdifferenz  $\Delta T_{\min} \geq 10 \text{ K}$  (NB5 und NB6) zu gewährleisten.

Neben der detaillierten Betrachtung der Rektifikation wird in der Detaillierungsstufe DS3 die Wärme- und Leistungsbilanz für den Gesamtprozess geschlossen. Hierfür wird das in Abbildung 5.5 gezeigte Dampfsystem mit Dampf auf Hochdruck- (HD) und Mitteldruck- (MD) Niveau verwendet.



**Abbildung 5.5:** Verfahrensfliessbild des Dampfsystems mit OptimierungsvARIABLEN OV und Nebenbedingungen NB

Aus dem Prozess anfallendes Kondensat wird zusammen mit einem Make-Up Strom in der Kondensatpumpe auf den MD von 40 bar gebracht. Dieser Druck ergibt sich durch die spätere Dampferzeugung im siedewassergekühlten Methanolreaktor. Von APPL 1997 wird in diesem Zusammenhang eine Kühltemperatur von  $250^\circ\text{C}$  genannt, die in etwa einem Dampfdruck von 40 bar entspricht. In einem ersten Wärmeübertrager wird das unterkühlte Kondensat mit dem Reaktoraustrittsstrom der Synthese vorgewärmt (vgl. auch Abbildung 5.3). Hierfür wird eine feste minimale Temperaturdifferenz von  $\Delta T_{\min} = 10 \text{ K}$  spezifiziert. In einem weiteren Wärmeübertrager wird das Kondensat gegen Synthesegas weiter angewärmt. Hierfür ist eine minimale Temperaturdifferenz von  $\Delta T_{\min} \geq 10 \text{ K}$  (NB7) nicht zu unterschreiten (siehe auch Abbildung 5.2). Die

Austrittstemperatur kann dabei zwischen 100 – 250 °C (OV14) gewählt werden. Die obere Grenze liegt knapp unterhalb der Sättigungstemperatur bei MD. Das vorgewärmte Kondensat wird nun auf MD und HD Schiene aufgeteilt.

Für die Erzeugung von HD Dampf im oberen Teil von Abbildung 5.5 wird der Druck des Kondensats in einer weiteren Pumpe auf 40 – 150 bar (OV16) erhöht. Die obere Grenze wurde dabei ausreichend hoch gewählt, um die Prozessoptimierung nicht einzuschränken. In dem nachfolgenden Wärmeübertrager erfolgt eine zusätzliche Temperaturerhöhung um 0.1 – 100 °C (OV15) mithilfe von Synthesegas, wobei eine minimale Temperaturdifferenz von  $\Delta T_{\min} \geq 10$  K (NB8) gefordert wird. Das HD Kondensat wird anschließend im Prozessgasboiler gegen deutlich heißeres Synthesegas verdampft. Vor der Nutzung wird der HD Satttdampf mithilfe von Rauchgas überhitzt. Für die zugehörige Temperaturerhöhung um 0.1 – 300 °C (OV 18) ist eine minimale Temperaturdifferenz von  $\Delta T_{\min} \geq 10$  K (NB9) einzuhalten. In der nachfolgenden Turbine wird der überhitzte HD Dampf zur Erzeugung mechanischer Leistung entspannt. Der Enddruck ergibt sich dabei durch die Kondensationstemperatur von 40 °C. Um Beschädigungen an der Turbine zu vermeiden wird nach SIGLOCH 2009 ein minimaler Dampfgehalt von 85 % (NB11) am Austritt der Turbine gefordert. Zudem muss durch die in der Turbine erzeugte mechanische Leistung der Gesamtbedarf der Pumpen und Kompressoren im Prozess gedeckt werden (NB12). Die HD Turbine kann bei einem Zwischendruck von 40 bar angezapft werden um gegebenenfalls zusätzlichen Dampf auf MD-Niveau bereitzustellen.

Für die Erzeugung von MD Dampf im unteren Teil von Abbildung 5.5 wird das vorgewärmte MD Kondensat dem Mantelraum des Methanolreaktors zugeführt. Ein Teil des erzeugten Satttdampfs kann dabei für die Beheizung von Reboiler 2 eingesetzt werden. Der Hauptteil des Satttdampfs wird zusammen mit gegebenenfalls aus der Turbine entnommenem Dampf über eine Temperaturerhöhung um 0.1 – 300 °C (OV19) mit einer minimalen Temperaturdifferenz von  $\Delta T_{\min} \geq 10$  K (NB10) gegen Rauchgas überhitzt. Der so erhaltene MD Dampf wird genutzt, um den Prozessdampfbedarf bei der Synthesegaserzeugung zu decken.

Die Restwärme des Rauchgases wird wie in Abschnitt 5.1 beschrieben zur Vorwärmung der Luft für die Feuerung des Dampfreformers genutzt. Die Restwärme des Sythesegases wird entsprechend Abschnitt 5.2 für die Beheizung der beiden Reboiler verwendet. Dabei kann für Reboiler 2 über eine variable Aufteilung (OV17) zusätzlich auf MD Satttdampf aus dem Reaktor zurückgegriffen werden, um den benötigten Wärmestrom zu decken.

## 5.4 Zusammenfassung und Vergleich

Die in den vorherigen Abschnitten eingeführten Optimierungsvariablen OV für die unterschiedlichen Detaillierungsstufen DS1 bis DS3 und deren Grenzen sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Gleiches gilt für die Nebenbedingungen NB, die in Tabelle 5.2 zu finden sind. Zusammen mit der modifizierten Kaltgaseffizienz in Gleichung (5.2) als Zielfunktion

ergeben sich so drei nichtlineare Optimierungsprobleme für die Detaillierungsstufen DS1 bis DS3.

**Tabelle 5.1:** Optimierungsvariablen in den unterschiedlichen Detaillierungsstufen und zugehörige untere und obere Grenzen UG bzw. OG.

Kürzel	Bezeichnung	UG	OG	DS1	DS2	DS3
OV1	Anteil Fuel an Erdgas	0	0.3	✓	✓	✓
OV2	Split Prereformer	0	1	✓	✓	✓
OV3	Temperatur Dampfreformer Eintritt in °C	550	650	✓	✓	✓
OV4	Temperatur Dampfreformer Austritt in °C	650	950	✓	✓	✓
OV5	D/C Verhältnis gesamt	1	3.5	✓	✓	✓
OV6	Split Dampf Dampfreformer/Prereformer	0	1	✓	✓	✓
OV7	CO <sub>2</sub> /C gesamt	0	0.5	✓	✓	✓
OV8	Split CO <sub>2</sub> Synthese/Syngaserzeugung	0	1	✓	✓	✓
OV9	Split CO <sub>2</sub> Dampfreformer/Prereformer	0	1	✓	✓	✓
OV10	Temperatur Luftvorwärmung in °C	25	500	✓	✓	✓
OV11	Recycle-Verhältnis	1	4		✓	✓
OV12	Synthesedruck in bar	50	81		✓	✓
OV13	Synthesetemperatur in °C	255	280		✓	✓
OV14	Temperatur MD Vorwärmung in °C	100	250			✓
OV15	Temperaturerhöhung HD Vorwärmung in °C	0.1	100			✓
OV16	Druck HD Dampf in bar	40	150			✓
OV17	Split MD Dampf für Reboiler 2	0	1			✓
OV18	Temperaturerhöhung HD Überhitzung in °C	0.1	300			✓
OV19	Temperaturerhöhung MD Überhitzung in °C	0.1	300			✓

In dem Optimierungsproblem für DS1 decken die Optimierungsvariablen OV1 bis OV10 die Synthesegaserzeugung mit zugehöriger Wärmeerzeugung im Brenner ab. Neben dem Erdgasanteil, der zum Brenner geführt wird, werden insbesondere die Prozessbedingungen im Dampfreformer durch Temperatur und Feedzusammensetzung beeinflusst. Die Optimierungsvariablen werden durch die Nebenbedingungen NB1 bis NB3 ergänzt, die die Luftvorwärmung und Ausnutzung des Rauchgases sinnvoll beschränken. Insgesamt ergeben sich in DS1 zahlreiche Freiheitsgrade, die durch die begrenzte Zahl an Nebenbedingungen nur geringfügig eingeschränkt werden.

In DS2 wird zusätzlich die Synthese detailliert betrachtet. Die zugehörigen Optimierungsvariablen OV11 bis OV13 beeinflussen die Reaktionsbedingungen und den Grad der Rückführung für die gleichgewichtslimitierte Reaktion zu Methanol. Zudem wird die Zusammensetzung am Reaktoreintritt über die Stöchiometriezahl in NB4 nichtlinear beschränkt. Insgesamt ist daher die Komplexität und Nichtlinearität in diesem Optimierungsproblem gegenüber dem in DS1 erhöht. Zu beachten ist, dass die

**Tabelle 5.2:** Nebenbedingungen und zugehörige Grenzen in den unterschiedlichen Detaillierungsstufen.

Kürzel	Bezeichnung	Grenze	DS1	DS2	DS3
NB1	Temperaturdifferenz Luftvorwärmung in K	$\geq 10$	✓	✓	✓
NB2	Temperaturdifferenz Rauchgas/Reformer in K	$\geq 140$	✓	✓	✓
NB3	Rauchgasendtemperatur in °C	$\geq 150$	✓	✓	✓
NB4	Stöchiometriezahl $SN$ am Reaktoreintritt	$\geq 2$		✓	✓
NB5	Temperaturdifferenz Reboiler 1 in K	$\geq 10$			✓
NB6	Temperaturdifferenz Reboiler 2 in K	$\geq 10$			✓
NB7	Temperaturdifferenz MD Vorwärmung in K	$\geq 10$			✓
NB8	Temperaturdifferenz HD Vorwärmung in K	$\geq 10$			✓
NB9	Temperaturdifferenz HD Überhitzung in K	$\geq 10$			✓
NB10	Temperaturdifferenz MD Überhitzung in K	$\geq 10$			✓
NB11	Dampfanteil HD Turbine in %	$\geq 85$			✓
NB12	Exportleistung HD Turbine in kW	$\geq 0$			✓

hier gezeigte Konfiguration für DS2 gegenüber dem Anwendungsbeispiel in SUNDBERG et al. 2017 weiterentwickelt wurde und somit kein direkter Vergleich der Ergebnisse möglich ist.

DS3 berücksichtigt zusätzlich die Rektifikation und das Dampfsystem im Detail. Durch die Optimierungsvariablen OV15 bis OV19 kann die Wärmerückgewinnung und die Erzeugung mechanischer Leistung an den Gesamtprozess angepasst werden. Gleichzeitig beschränken die Nebenbedingungen NB5 bis NB12 die Wärmerückgewinnung sinnvoll. Durch das Schließen der Gesamtwärmebilanz um den Prozess wird das Optimierungsproblem für DS3 deutlich komplexer als in den vorherigen Detaillierungsstufen. Es ergeben sich starke interne Kopplungen zwischen den Optimierungsvariablen und Nebenbedingungen. Dies gilt insbesondere für die Nebenbedingung NB12, über die die Bilanz der mechanischen Leistung im Gesamtprozess geschlossen wird.

Anhand der Prozessmodelle für DS1 bis DS3 soll untersucht werden, wie sich die stufenweise steigende Komplexität der Optimierungsprobleme auf die erreichte Kaltgas-effizienz  $\eta_{KG}$  und die zugehörige optimale Konfiguration des Prozesses auswirkt. Parallel dazu wird die Effizienz verschiedener Optimierungsprogramme zur Prozessoptimierung evaluiert.

# 6 Implementierung

Die folgenden Abschnitte beschreiben die Implementierung der Prozessmodelle, der Optimierungsprobleme und der Schnittstelle zur Prozessoptimierung. Das Kapitel wird mit den gewählten Einstellungen für die Optimierungsprogramme abgeschlossen.

## 6.1 Prozessmodelle und Optimierungsprobleme

Die Prozessmodelle wurden in der kommerziellen Software UniSim<sup>®</sup> Design V430 von Honeywell implementiert. Im Rahmen dieser Arbeit wird die dort verfügbare Stoffdatenmethode Peng-Robinson verwendet. Zur exakten Beschreibung der Thermodynamik für den Reinstoff Wasser wird für das Dampfsystem die Stoffdatenmethode NBS Steam eingesetzt. Sämtliche benötigten Grundoperationen stehen in der Bibliothek des Prozesssimulators zur Verfügung. Die Lösung der Prozesssimulation erfolgt sequentiell-modular. Die Grundoperationen werden der Reihe nach basierend auf den Ergebnissen der vorherigen Grundoperationen berechnet. Rückführungen erfordern eine iterative Lösung, wobei der Nutzer die Position des hierfür geschätzten Stroms durch sogenannte RECYCLE-Operationen selbst bestimmen kann.

Verfahrenstechnisch besitzt der in der Rektifikation (siehe Abschnitt 5.3) erforderliche Wärmestrom zur Trennung der Komponenten MeOH/H<sub>2</sub>O signifikanten Einfluss auf die Wärmeintegration des Gesamtprozesses. Der Wärmestrom hängt maßgeblich von den zugrundeliegenden thermodynamischen Stoffdaten ab. Für eine ausreichende Genauigkeit war es hier erforderlich, den binären Wechselwirkungsparameter  $k_{ij}$  der Stoffdatenmethode Peng-Robinson für die Komponenten MeOH/H<sub>2</sub>O mithilfe der UniSim Thermo Workbench und experimentellen Ergebnissen von ÁLVAREZ et al. 2011 auf einen Wert von  $-0.1071$  anzupassen.

Numerisch ist für die Prozessoptimierung eine möglichst genaue und zuverlässige Lösung der Prozesssimulation erforderlich. Allerdings führt die Verkettung numerischer Berechnungen, wie in in Abschnitt 4.3.2 beschrieben, zu einem größeren relativen Fehler  $\varepsilon_{\text{rel}}$  als für Einzelberechnungen. Um diesen Fehler so weit wie möglich zu begrenzen, wurden die internen Lösungstoleranzen für Grundoperationen und RECYCLE-Operationen gegenüber den Standardwerten deutlich reduziert. In den Wärmeübertragern wurde bei der Energiebilanz die Toleranz wie auch von WAHL et al. 2013 beschrieben von  $10^{-4}$  auf  $10^{-10}$  reduziert, für spezifizierte minimale Temperaturdifferenzen wurde eine Toleranz von  $10^{-6}$  gesetzt. In den RECYCLE-Operationen wurde die Toleranz generell von  $10^0$  auf  $10^{-10}$  verringert, im Synthesekreislauf für die Komponentenbilanzen auf  $10^{-6}$  und für die übrigen Größen auf  $10^{-4}$ . In der Topping- und Hauptkolonne wurde die Toleranz für thermodynamische Gleichgewichte auf  $10^{-12}$  bzw.  $10^{-10}$  und für Spezifikationen auf  $10^{-8}$  bzw.  $10^{-6}$  gesetzt. Die obere Schranke für den relative Fehler der Prozesssimulation liegt in der Größenordnung  $\varepsilon_{\text{rel}} \approx 10^{-6}$  und wurde durch mehrfachen Aufruf der gleichen Optimierungsvariablen  $x$  ausgehend von unterschiedlichen Startpunkten erhalten.

Die Skalierung des Optimierungsproblems ist laut NOCEDAL & WRIGHT 2006 wichtig für die Effizienz der verschiedenen Optimierungsprogramme. Unterschiede in den Zahlenwerten über viele Größenordnungen können hier zu vermeidbaren Problemen führen. Die Optimierungsvariablen wurden daher in einem Zwischenschritt entdimensioniert und werden dem Optimierungsprogramm mit einem Wertebereich von 0 bis 1 zur Verfügung gestellt. Die Zielfunktion in Gleichung (5.2) weist bereits eine geeignete Größenordnung auf. Für die Nebenbedingungen können meist a priori keine unteren oder oberen Grenzen festgelegt werden. Bei den Größen in der zugehörigen Tabelle 5.2 handelt es sich überwiegend um Temperaturen und Temperaturdifferenzen, weswegen typische Verletzungen der Nebenbedingungen für den betrachteten Prozess automatisch innerhalb von 1–2 Größenordnungen liegen. Die Einheiten der übrigen Nebenbedingungen wurden geeignet gewählt, damit sich die resultierenden Zahlenwerte innerhalb der gleichen Größenordnungen wie für die übrigen Nebenbedingungen bewegen.

Neben dem Prozess an sich wird auch das zugehörige Optimierungsproblem im Prozesssimulator UniSim<sup>®</sup> Design definiert. Hierfür kommen sogenannte SPREADSHEETS zum Einsatz (siehe Abbildung 6.1).

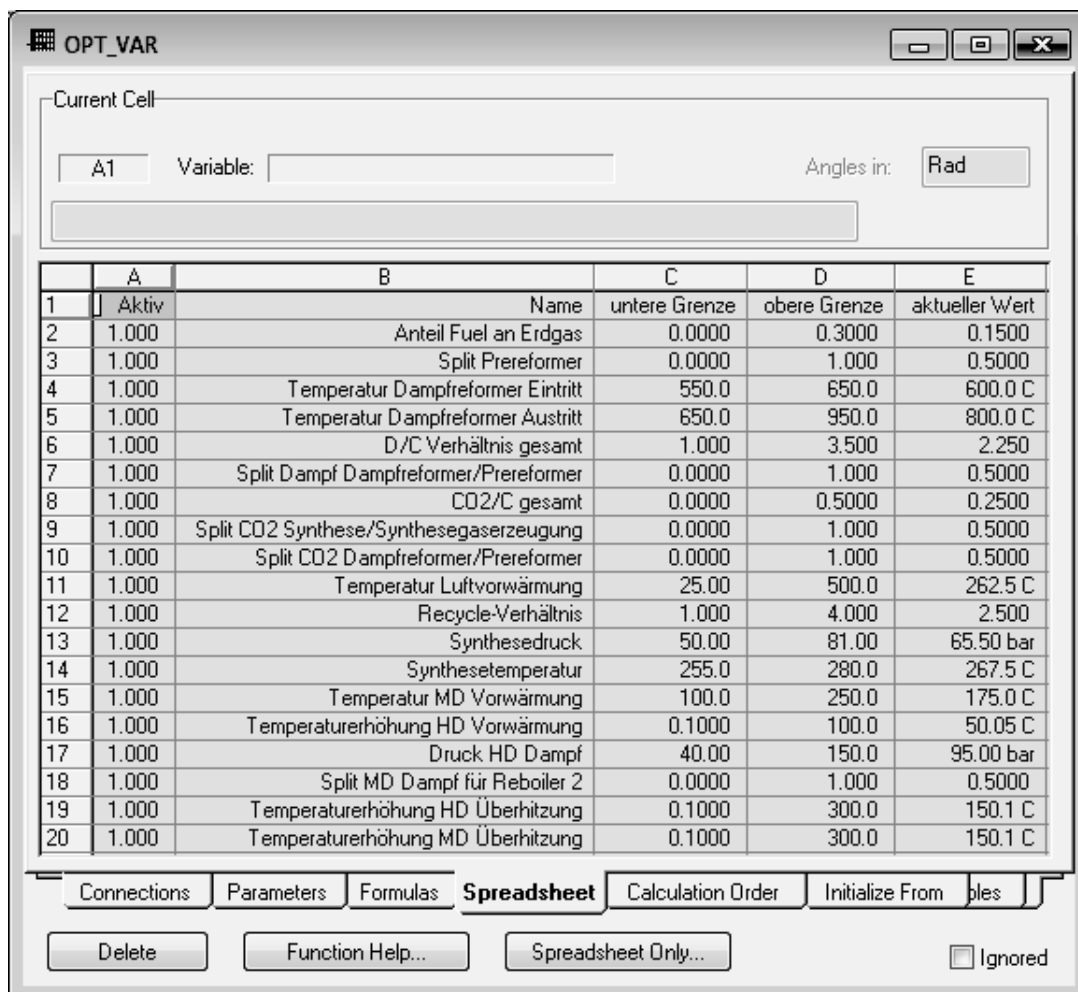


Abbildung 6.1: Eigene Struktur zur Definition der Optimierungsvariablen im Prozesssimulator UniSim<sup>®</sup> Design

Damit die Informationen später durch die Optimierungsschnittstelle ausgelesen werden können, ist dabei sowohl eine bestimmte Nomenklatur als auch Struktur für das SPREADSHEET einzuhalten. Abbildung 6.1 zeigt hierfür exemplarisch das SPREADSHEET OPT\_VAR für die Definition der Optimierungsvariablen und der zugehörigen oberen und unteren Grenzen. Zur Anschaulichkeit sind dabei unskalierte Werte für die Optimierungsvariablen gezeigt. Für die Prozessoptimierung im Rahmen dieser Arbeit werden auf den Bereich von 0 bis 1 skalierte Werte verwendet, die in einem separaten Spreadsheet auf die eigentlichen Prozessgrößen umgerechnet werden.

In der ersten Spalte des SPREADSHEETS OPT\_VAR kann durch den Nutzer mit 0 oder 1 vorgegeben werden, ob die Optimierungsvariable dem Optimierungsprogramm zur Verfügung gestellt wird. In der zweiten Spalte kann ein Name vergeben werden. Die nachfolgenden drei Spalten enthalten untere bzw. obere Grenzen und den aktuellen Wert der Optimierungsvariable. Der aktuelle Wert wird später von außen verändert und ist mit der zugehörigen Prozessvariable verknüpft, eine Änderung wirkt sich daher direkt auf den Prozess aus.

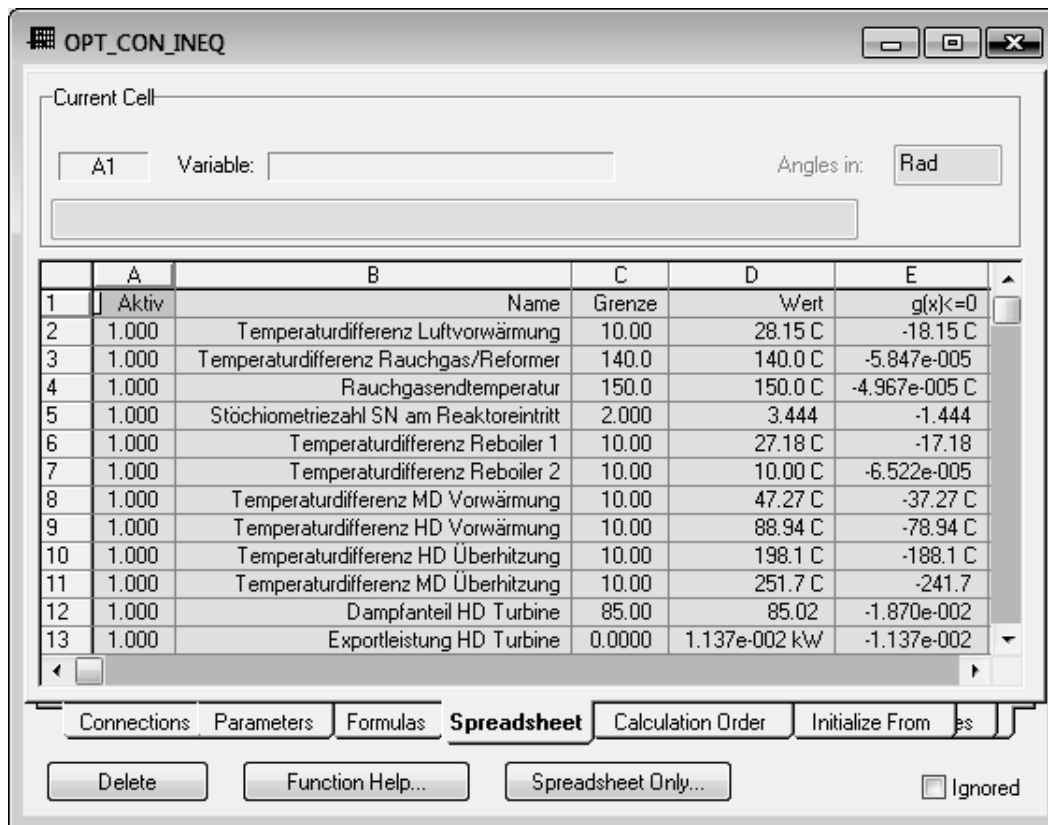
Die Zielfunktion  $f(x)$  wird in dem SPREADSHEET OPT\_OBJ zur Verfügung gestellt. Standardmäßig ist hierfür wie in Abbildung 6.2 gezeigt die Zelle B8 vorgesehen.

	A	B	C	D
1				
2	Massenstrom CH4	7.158e+004 kg/h		
3	Heizwert CH4	5.003e+004 kJ/kg		
4	Massenstrom MeOH	1.274e+005 kg/h		
5	Heizwert MeOH	1.989e+004 kJ/kg		
6				
7	Kaltgaseffizienz	70.78		
8	Zielfunktionswert	-70.78		
9				

**Abbildung 6.2:** Definition der Zielfunktion im Prozesssimulator UniSim<sup>®</sup> Design

Die Definition der Nebenbedingungen erfolgt in den SPREADSHEETS OPT\_CON\_INEQ für Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  und OPT\_CON\_EQ für Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$ . Abbildung 6.3 zeigt beispielhaft die Struktur für Ungleichungsnebenbedingungen, bis auf die Benennung des SPREADSHEETS wird für Gleichungsnebenbedingungen die gleiche Grundstruktur verwendet. In der ersten Spalte erfolgt wie für die Optimierungsvariablen die Aktivierung bzw. Deaktivierung der Nebenbedingung. In der zweiten Spalte kann ein Name vergeben werden. Die dritte Spalte enthält den aus der

Simulation importierten Wert, in der nachfolgenden Spalte ist der zugehörige Grenzwert festgehalten. Aus diesen beiden Werten wird in der letzten Spalte der Rückgabewert für die Nebenbedingung berechnet. Für eine eingehaltene Nebenbedingung  $g(x)$  muss dabei ein Wert  $< 0$  zurückgegeben werden.



**Abbildung 6.3:** Eigene Struktur zur Definition der Ungleichungsnebenbedingungen im Prozesssimulator UniSim® Design



## 6.2 Optimierungsschnittstelle

Die Implementierung der eigenen Optimierungsschnittstelle erfolgte objektorientiert in MATLAB. Über selbst programmierte Klassen werden die Prozesssimulation und das darin definierte Optimierungsproblem als einfache Funktionen in MATLAB bereitgestellt. Diesen Funktionen kann das Optimierungsprogramm die Optimierungsvariablen  $x$  vorgeben und erhält die Werte der Zielfunktion  $f(x)$  und der Ungleichungs- und Gleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  bzw.  $h(x)$  als Rückgabe. So können alle in MATLAB direkt oder indirekt verfügbaren Optimierungsprogramme zur Prozessoptimierung verwendet werden. Die eigentliche Kommunikation zwischen MATLAB und Prozesssimulator erfolgt über einen von MATLAB aus gestarteten ActiveX-Server.

### 6.2.1 Initialisierung

Während der Initialisierung der Schnittstelle wird das in Abschnitt 6.1 beschriebene Optimierungsproblem im Prozesssimulator ausgelesen. Unter anderem werden so die Zahl der Optimierungsvariablen, deren untere und obere Grenzen sowie ggf. die Zahl und Art der Nebenbedingungen ermittelt und in MATLAB gespeichert. Die Schnittstelle greift dabei stets automatisch auf die aktuell geöffnete Prozesssimulation zu, es muss daher kein Pfad oder Dateiname spezifiziert werden. Die benötigte Zeit für eine Simulation wird durch Minimieren des Fensters des Prozesssimulators während der Prozessoptimierung deutlich reduziert.

### 6.2.2 Aufruf

Bei einem Aufruf der Zielfunktion  $f(x)$ , der Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  oder der Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$  durch das Optimierungsprogramm wird zunächst geprüft, ob die Ergebnisse für die gewählten Optimierungsvariablen  $x$  bereits im Zwischenspeicher der Optimierungsschnittstelle verfügbar sind, gegebenenfalls werden diese ohne erneuten Simulationsaufruf direkt zurückgegeben.

Andernfalls wird eine neue Simulation angestoßen und die Werte der Optimierungsvariablen  $x$  in das zugehörige Spreadsheet im Prozesssimulator übertragen. Der Prozesssimulator UniSim<sup>®</sup> Design würde dabei nach jeder einzeln übertragenen Variable einen neuen Simulationsaufruf starten. Daher wird die Simulation vor der eigentlichen Übertragung der Werte angehalten und erst nach der Übertragung sämtlicher Optimierungsvariablen  $x$  wieder gestartet.

Nach abgeschlossener Simulation werden die Werte der Zielfunktion  $f(x)$ , der Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  und der Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$  aus den in Abschnitt 6.1 gezeigten SPREADSHEETS ausgelesen und in dem Zwischenspeicher der Optimierungsschnittstelle abgelegt.

Der Zwischenspeicher wird aufgrund der Besonderheiten des hier verwendeten Ansatzes zur Prozessoptimierung eingesetzt. In der mathematischen Optimierung werden werden

Zielfunktion  $f(x)$ , Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  und Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$  üblicherweise durch getrennte Gleichungssysteme repräsentiert und separat durch das Optimierungsprogramm aufgerufen. Im Fall des hier vorliegenden Ansatzes zur Prozessoptimierung werden allerdings bei einem Aufruf von z. B.  $f(x)$  auch gleichzeitig die Rückgabewerte  $g(x)$  und  $h(x)$  mit ermittelt. Für einen nachfolgenden, separaten Aufruf von  $g(x)$  ist daher keine weitere Prozesssimulation erforderlich und die Rückgabewerte können direkt aus dem Zwischenspeicher ausgelesen werden.

### 6.2.3 Fehlerbehandlung

Für einige Kombinationen der Optimierungsvariablen  $x$  können keine Werte für Zielfunktion  $f(x)$ , Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  oder Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$  ermittelt werden. Dies kann insbesondere durch physikalisch nicht sinnvolle Zustände, z. B. Temperaturen unter 0 K, hervorgerufen werden. Zudem kann der Lösungsalgorithmus des Prozesssimulators aufgrund numerischer Probleme frühzeitig abbrechen.

Beim Auslesen von fehlerhaften Werten im Simulator wird ein spezifischer Fehlercode zurückgegeben. In diesem Fall wird die Simulation durch die Optimierungsschnittstelle auf den Stand des letzten gültigen Simulationslaufs im Zwischenspeicher zurückgesetzt. Sollte nach dem erneuten Aufruf für die aktuellen Optimierungsvariablen  $x$  wieder kein gültiges Ergebnis gefunden werden, wird die Simulation auf den Stand des vorletzten gültigen Simulationslaufs zurückgesetzt und der Aufruf in der Standardeinstellung noch ein weiteres Mal wiederholt.

Bleibt der Fehlercode bestehen, wird angenommen, dass sich der Prozess an einem physikalisch nicht sinnvollen Zustand befindet. Die ungültigen Werte von Zielfunktion  $f(x)$ , Ungleichungsnebenbedingungen  $g(x)$  und Gleichungsnebenbedingungen  $h(x)$  werden durch den schlechten Standard-Ersatzwert von 1000 ersetzt. Auf diese Weise erhält das Optimierungsprogramm die Rückmeldung, dass der gewählte Punkt entweder einen schlechten Zielfunktionswert oder eine große Verletzung einer oder mehrerer Nebenbedingungen aufweist. Dementsprechend werden in folgenden Iterationen bevorzugt Punkte in alternative Suchrichtungen gewählt.

### 6.2.4 Numerische Ableitung

In der Optimierungsschnittstelle werden die Gradienten mittels numerischer Näherung der Ableitungen bereitgestellt (siehe Abschnitt 4.3). Die Zielfunktion und sämtliche Nebenbedingungen müssen hierfür jeweils nach allen Optimierungsvariablen abgeleitet werden. Als Optionen sind vorwärtsgerichtete Differenzenquotienten nach Gleichung (4.24) und zentrale Differenzenquotienten nach Gleichung (4.25) in der Schnittstelle implementiert.

Wie in Abschnitt 4.3.2 erläutert, hängt die Genauigkeit der so erhaltenen Ableitungen insbesondere von der gewählten Schrittweite  $h$  ab. Eine zu große Schrittweite  $h$  berücksichtigt gegebenenfalls nichtlineare Zusammenhänge nicht ausreichend genau. Eine zu

kleine Schrittweite  $h$  bewirkt nur eine geringe Veränderung des Funktionswerts. Dadurch wirkt sich der numerische Fehler der Simulation stärker auf den erhaltenen Ableitungswert aus. Zusätzlich ist für den hier verwendeten Ansatz zur Prozessoptimierung eine Mindestschrittweite erforderlich, damit der Lösungsalgorithmus des Prozesssimulators eine neue Berechnung anstößt und nicht aufgrund der internen Toleranz am aktuellen Zustand verbleibt. In diesem Fall würden die gleichen Werte für beide Punkte und damit eine Ableitung von 0 zurückgegeben werden. Die Lösungsgenauigkeit der in dieser Arbeit betrachteten Prozesssimulation wurde daher durch programmspezifische Einstellungen signifikant erhöht um auch bei kleinen Schrittweiten zuverlässig eine Neuberechnung anzustoßen. Die verwendete Schrittweite zur genauen Bestimmung numerischer Ableitungen liegt damit in der Regel deutlich über dieser Mindestschrittweite.

Die numerischen Ableitungen erfassen die Abhängigkeit der Zielfunktion und der Nebenbedingungen von den Optimierungsvariablen. Für den Sonderfall, dass keine Abhängigkeit besteht bzw. die Ableitung nach einer Optimierungsvariable den Wert 0 annimmt, kann durch den statistischen Fehler der Prozesssimulation allerdings trotzdem eine numerisch bedingte geringe Abhängigkeit verbleiben. Sollte dieser Umstand für ein Optimierungsprogramm problematisch oder nachteilig sein, kann der Wert der Ableitung für geringe Funktionswertunterschiede im Bereich eines geschätzten relativen Fehlers der Prozesssimulation  $\varepsilon_{\text{rel}}$  gegebenenfalls auf 0 reduziert werden. Unter Umständen können Optimierungsprogramme so Zusammenhänge zwischen Variablen ausschließen und die Komplexität des Problems reduzieren.

Im Rahmen dieser Arbeit werden die numerischen Ableitungen für die gradientenbasierten Optimierungsprogramme sowohl über vorwärtsgerichtete als auch zentrale Differenzenquotienten bestimmt. Die in Abschnitt 4.3 beschriebene adaptive Schrittweitenbestimmung nach GILL et al. 1983 wurde ebenfalls in der Schnittstelle implementiert. Für die hier durchgeführten Untersuchungen wurde allerdings, aufgrund der an sich bereits ausreichend genauen Ergebnisse und der andernfalls erwarteten hohen Zahl an zusätzlichen Funktionsaufrufen, auf die Verwendung einer adaptive Schrittweite verzichtet, es wird eine konstante Schrittweite  $h$  verwendet. Die zugehörigen Zahlenwerte und Einstellungen werden in Abschnitt 6.3 vorgestellt.

### 6.2.5 Externe Grundoperationen

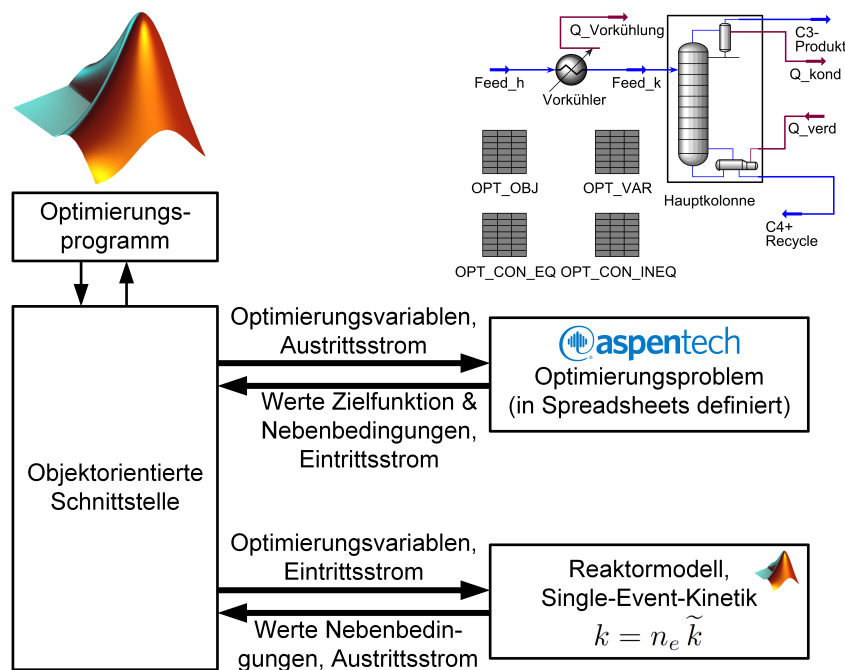
Die implementierte Optimierungsschnittstelle erlaubt die Einbindung externer Grundoperationen in eine bestehende Prozesssimulation. Hierfür müssen die Grundoperationen entweder in MATLAB implementiert oder von dort aus aufrufbar sein.

Die Ströme, die in die Grundoperation ein- bzw. austreten sollen, werden im Prozesssimulator hierfür durch ihre spezifische Benennung für die Optimierungsschnittstelle gekennzeichnet. Für Prozesse ohne Rückführungen um die externe Grundoperation wird zunächst die Prozesssimulation gelöst um den Eintrittsstrom zu ermitteln. Der Zustand und die Zusammensetzung des Eintrittsstroms wird an die Funktion für die Grundoperation in MATLAB übergeben, deren Ergebnisse für den Austrittsstrom

werden zurück in den Prozesssimulator übertragen. Mit dem so definierten Austrittsstrom kann die Prozesssimulation abgeschlossen werden und die Ergebnisse für Zielfunktion und Nebenbedingungen werden zurück gegeben.

Ist eine Rückführung um die externe Grundoperation erforderlich, wird an einer geeigneten Stelle die Stromführung im Prozesssimulator unterbrochen. Die Ströme an dieser Stelle werden über ihre Benennung als Ein- und Austrittsstrom für die Rückführung gekennzeichnet. Der zu schätzende Zustand und die Zusammensetzung des Austrittsstroms werden in der Optimierungsschnittstelle automatisch erkannt und als Optimierungsvariablen abgebildet. Zusätzlich ergeben sich entsprechend viele zusätzliche Gleichungsnebenbedingungen für die Lösung der Problemstellung. Das Rückführungsproblem wird so neben den übrigen Optimierungsvariablen und Nebenbedingungen als Teil der Optimierung des Gesamtprozesses gelöst.

Dieses Vorgehen wurde in SUNDBERG et al. 2018 zur Optimierung eines Prozesses für das Cracken höherer Olefine angewendet. Abbildung 6.4 zeigt schematisch den dort verwendeten Ansatz zur Prozessoptimierung. Im Gegensatz zu der vorliegenden Arbeit kommt der Prozesssimulator Aspen HYSYS<sup>®</sup> in Verbindung mit der Schnittstelle zur Prozessoptimierung zum Einsatz.



**Abbildung 6.4:** Schematische Darstellung zur Verwendung der Optimierungsschnittstelle mit einer externen Grundoperation nach SUNDBERG et al. 2018

Ein Reaktormodell mit komplexer Kinetik von ARETIN et al. 2015 stand bereits in MATLAB zur Verfügung und wurde in einen neu in Aspen HYSYS<sup>®</sup> implementierten Prozess mit Rückführung und Trennteil integriert. Dadurch konnte eine betriebskostenbasierte Optimierung für den Gesamtprozess unter Berücksichtigung verschiedener Preisszenarien durchgeführt werden.

## 6.3 Gewählte Einstellungen für die Optimierungsprogramme

In Tabelle 6.1 werden die verwendeten Einstellungen für die betrachteten Optimierungsprogramme vorgestellt. Hierbei werden nur möglichst wenig Einstellungen verändert, um die Optimierungsprogramme nicht zu sehr an die spezielle Problemstellung anzupassen. Auf diese Weise lassen sich allgemeine Aussagen über die Effizienz der Optimierungsprogramme ableiten, die auch für andere Prozessoptimierungsprobleme Gültigkeit besitzen. Die im Rahmen der Arbeit veränderten Einstellungen sind dabei entweder besonders wichtig für die Funktionsweise des zugrundeliegenden Algorithmus oder wurden in kurzen Vorstudien als besonders einflussreich identifiziert.

**Tabelle 6.1:** Gegenüber den Standardwerten veränderte Einstellungen für die unterschiedlichen Optimierungsprogramme.

Programm	Einstellung	Beschreibung	Wert
fmincon	Algorithm	Algorithmus	'sqp'
	FunctionTolerance	Toleranz Zielfunktionswert	$10^{-4}$
	StepTolerance	Toleranz Schrittweite	$10^{-12}$
	-	Differenzenquotient	vorwärts/zentral
	-	Schrittweite Differenzenquotient	$10^{-3}/10^{-2}$
IPOPT	tolr	Toleranz Zielfunktionswert relativ	$10^{-3}$
	tola	Toleranz Zielfunktionswert absolut	$10^{-3}$
	-	Differenzenquotient	vorwärts/zentral
	-	Schrittweite Differenzenquotient	$10^{-3}/10^{-2}$
COBYLA	tolr	Toleranz Zielfunktionswert relativ	$10^{-6}$
	tola	Toleranz Zielfunktionswert absolut	$10^{-6}$
CMA-ES	TolFun	Toleranz Zielfunktionswert	$10^{-6}$
	TolX	Toleranz Schrittweite	$10^{-5}$
	sigma	Standardabweichung um Startpunkt	$\frac{1}{3}$
	Noise.on	Behandlung von numerischem Rauschen	1
	CMA.active	Aktive Kovarianzmatrix-Anpassung	1
		Strafparameter $\mu$	$10^{-1}$
GA	TolFun	Toleranz Zielfunktionswert	$10^{-6}$
	TolCon	Toleranz Nebenbedingungen	$10^{-6}$
	CreationFcn	Startpopulation	'@gacreationuniform'
	NonlinConAlgorithm	Nichtlineare Nebenbedingungen	'penalty'

Die gewählten Einstellungen zielen darauf ab, das Optimum des betrachteten Optimierungsproblems bis auf eine technisch relevante relative Genauigkeit von ca.  $10^{-4}$  zu ermitteln. Neben den im Folgenden gezeigten Einstellungen werden Limitierungen wie eine maximale Zahl an Funktionsaufrufen oder eine maximale Laufzeit der Optimierungsprogramme gegebenenfalls erhöht, um einen frühzeitigen Abbruch zu verhindern. Dadurch steuern nur die Toleranzen der mathematischen Abbruchkriterien die Genauigkeit des erhaltenen Optimierungsergebnisses. Zu große Toleranzen führen dabei zu einem frühzeitigen Abbruch und suboptimalen Ergebnissen. Zu kleine Toleranzen zeigen dagegen unnötig viele Iterationen im Bereich der numerischen Genauigkeit des zugrundeliegenden Optimierungsproblems ohne eine weitere Verbesserung zu erreichen.

Die durch den Nutzer vorgegebenen Toleranzen werden je nach Optimierungsprogramm intern unterschiedlich angewendet und sind nicht direkt übertragbar. Daher wurden individuell sinnvolle Werte ermittelt um einen Vergleich der Ergebnisse zu ermöglichen. Für die Optimierungsprogramme IPOPT und COBYLA wurden hierfür die Einstellungen auf der Ebene der OPTI Toolbox herangezogen.

Für CMA-ES und fmincon wird zusätzlich die Schrittweite durch die Optimierungsvariablen  $x$ , verglichen mit der letzten Iteration, als Abbruchkriterium verwendet. Für die auf Werte zwischen 0 und 1 skalierten Optimierungsvariablen wird für CMA-ES eine Schrittweitentoleranz von  $10^{-5}$  gesetzt, wodurch eine ausreichende Genauigkeit für die ermittelten Optimierungsvariablen erreicht wird. Für fmincon wird die Schrittweitentoleranz auf  $10^{-12}$  gesetzt, da das Optimierungsprogramm ansonsten oft frühzeitig mit signifikanter Verletzung der Nebenbedingungen beendet wurde.

Für sämtliche Optimierungsprogramme ist zum erfolgreichen Abschluss des Optimierungsvorgangs zusätzlich die Einhaltung der Nebenbedingungen erforderlich. Für GA wird die Toleranz für die Einhaltung der Nebenbedingungen auf  $10^{-6}$  erhöht um eine ausreichend geringe Verletzung der Nebenbedingungen zu erreichen. Für CMA-ES wird die Einhaltung der Nebenbedingungen über einen ausreichend großen Strafparameter  $\mu = 10^{-1}$  für Gl. (4.20) sichergestellt.

Neben den Abbruchkriterien werden weitere spezifische Einstellungen für die Optimierungsprogramme gewählt. Für fmincon wird der gewünschte Algorithmus sqp eingestellt. Für CMA-ES wird die Standardabweichung für die Bestimmung der Startpopulation um den Startpunkt vorgegeben. Der gewählte Wert von  $\frac{1}{3}$  entspricht dem in der Implementierung empfohlenen Standardwert. Zusätzlich wird bei CMA-ES eine Einstellung zur Behandlung der reduzierten numerischen Genauigkeit und die aktive Anpassung der Kovarianzmatrix aktiviert, die in Vorstudien beide zu einer Verbesserung der Ergebnisse führten. Für GA wird als Methode zur Erzeugung der Startpopulation eine stochastische Verteilung gewählt. Als Methode zur Behandlung der nichtlinearen Nebenbedingungen wurde das Strafverfahren penalty ausgewählt. Das alternative Lagrangeverfahren würde die Bestimmung numerischer Gradienten für jedes Individuum der Population und ein Vielfaches der Rechenzeit erfordern.

Die Gradienten für die Optimierungsprogramme `fmincon` und `IPOPT` werden sowohl mit vorwärtsgerichteten (v) als auch zentralen (z) Differenzenquotienten angenähert. In diesem Zusammenhang werden die Optimierungsprogramme als `fmincon(v)`, `fmincon(z)`, `IPOPT(v)` und `IPOPT(z)` bezeichnet. Die jeweiligen Schrittweiten  $h = 10^{-3}$  bzw.  $h = 10^{-2}$  wurden nach den Gleichungen (4.28) bzw. (4.29) gewählt. Hierfür wurde der relative Fehler  $\varepsilon_{\text{rel}} \approx 10^{-6}$  der Simulation (siehe Abschnitt 6.1) herangezogen. Durch die Untersuchung beider Varianten soll geklärt werden, ob die erhöhte Genauigkeit des zentralen Differenzenquotienten die damit verbundenen zusätzlichen Funktionsaufrufe rechtfertigt.





# 7 Prozessoptimierung der Methanolsynthese

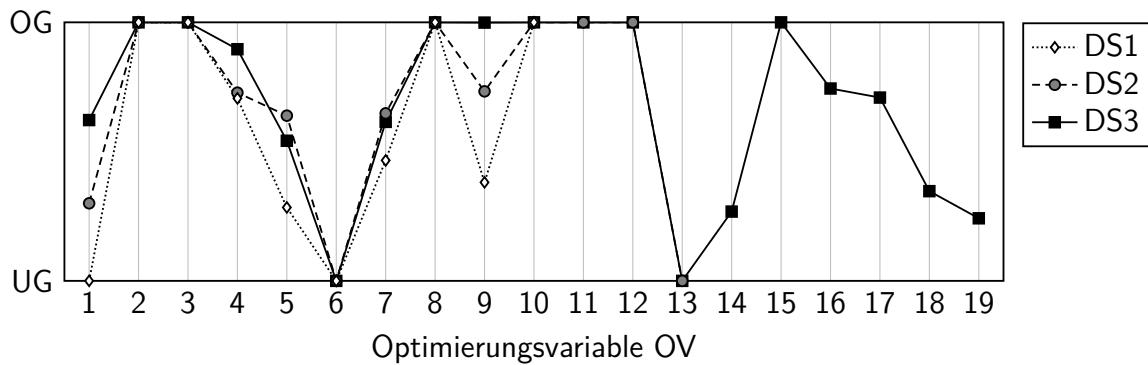
Im ersten Abschnitt dieses Kapitels werden die Ergebnisse der Prozessoptimierung für die unterschiedlichen Detaillierungsstufen vorgestellt und diskutiert. Im zweiten Abschnitt erfolgt ein Vergleich der verwendeten Optimierungsprogramme.

## 7.1 Optimale Prozesskonfigurationen

Die optimalen Prozesskonfigurationen für die Detaillierungsstufen DS1 bis DS3 sind in Tabelle 7.1 zusammengefasst.

**Tabelle 7.1:** Optimierungsvariablen OV und Kaltgaseffizienzen  $\eta_{KG}$  für die optimalen Prozesskonfigurationen in den Detaillierungsstufen DS1 bis DS3

Kürzel	Bezeichnung	UG	OG	DS1	DS2	DS3
OV1	Anteil Fuel an Erdgas	0	0.3	0.000	0.090	0.187
OV2	Split Prereformer	0	1	1	1	1
OV3	Temperatur Dampfreformer Eintritt in °C	550	650	650	650	650
OV4	Temperatur Dampfreformer Austritt in °C	650	950	861.9	868.4	918.9
OV5	D/C Verhältnis gesamt	1	3.5	1.709	2.598	2.356
OV6	Split Dampf Dampfreformer/Prereformer	0	1	0	0	0
OV7	CO <sub>2</sub> /C gesamt	0	0.5	0.233	0.324	0.307
OV8	Split CO <sub>2</sub> Synthese/Syngaserzeugung	0	1	1	1	1
OV9	Split CO <sub>2</sub> Dampfreformer/Prereformer	0	1	(0.381)	(0.733)	(0.999)
OV10	Temperatur Luftvorwärmung in °C	25	500	500	500	500
OV11	Recycle-Verhältnis	1	4		4	4
OV12	Synthesedruck in bar	50	81		81.0	81.0
OV13	Synthesetemperatur in °C	255	280		255.0	255.0
OV14	Temperatur MD Vorwärmung in °C	100	250			140.2
OV15	Temperaturerhöhung HD Vorwärmung in °C	0.1	100			100.0
OV16	Druck HD Dampf in bar	40	150			121.9
OV17	Split MD Dampf für Reboiler 2	0	1			0.709
OV18	Temperaturerhöhung HD Überhitzung in °C	0.1	300			104.1
OV19	Temperaturerhöhung MD Überhitzung in °C	0.1	300			(72.6)
Kaltgaseffizienz $\eta_{KG}$ in %				74.03	72.07	70.81



**Abbildung 7.1:** Zwischen unterer (UG) und oberer (OG) Grenze normierte Werte der Optimierungsvariablen in den unterschiedlichen Detaillierungsstufen DS1 bis DS3

Ergänzend dazu zeigt Abbildung 7.1 die auf die unteren und oberen Grenzen normierten Optimierungsvariablen. Die jeweils am Optimum aktiven Nebenbedingungen können Tabelle 7.2 entnommen werden. In Tabelle 7.3 sind zusätzliche charakteristische Prozessgrößen zusammengefasst. Aufgrund der großen Zahl an unterschiedlichen Optimierungsprogrammen, Startpunkten und Wiederholungen kann angenommen werden, dass die so erhaltenen besten Prozesskonfigurationen für Detaillierungsstufe DS1 bis DS3 jeweils das globale Optimum des Optimierungsproblems darstellen.

**Tabelle 7.2:** Relevanz der Nebenbedingungen für die optimalen Prozesskonfigurationen in den unterschiedlichen Detaillierungsstufen DS1 bis 3

Kürzel	Bezeichnung	Grenze	DS1	DS2	DS3
NB1	Temperaturdifferenz Luftvorwärmung in K	$\geq 10$	-	-	-
NB2	Temperaturdifferenz Rauchgas/Reformer in K	$\geq 140$	aktiv	aktiv	aktiv
NB3	Rauchgasendtemperatur in °C	$\geq 150$	aktiv	aktiv	aktiv
NB4	Stöchiometriezahl $SN$ am Reaktoreintritt	$\geq 2$		-	-
NB5	Temperaturdifferenz Reboiler 1 in K	$\geq 10$			-
NB6	Temperaturdifferenz Reboiler 2 in K	$\geq 10$			aktiv
NB7	Temperaturdifferenz MD Vorwärmung in K	$\geq 10$			-
NB8	Temperaturdifferenz HD Vorwärmung in K	$\geq 10$			aktiv
NB9	Temperaturdifferenz HD Überhitzung in K	$\geq 10$			-
NB10	Temperaturdifferenz MD Überhitzung in K	$\geq 10$			-
NB11	Dampfanteil HD Turbine in %	$\geq 85$			aktiv
NB12	Exportleistung HD Turbine in kW	$\geq 0$			aktiv

In den folgenden Abschnitten werden die Ergebnisse für die unterschiedlichen Detaillierungsstufen vorgestellt und diskutiert. Dabei soll insbesondere der Einfluss der

**Tabelle 7.3:** Wichtige Prozessgrößen für die optimalen Prozesskonfigurationen in den unterschiedlichen Detaillierungsstufen DS1 bis DS3.

Bezeichnung	DS1	DS2	DS3
Methanumsatz in der Synthesegaserzeugung	0.699	0.828	0.891
Stöchiometriezahl $SN$ am Reformeraustritt	3	3	3
Stöchiometriezahl $SN$ nach (weiterer) $CO_2$ Zugabe	2	1.88	1.98
Stöchiometriezahl $SN$ am Reaktoreintritt	2	2.21	3.40
Kohlenstoffbasierte Methanolausbeute in der Synthese	1	0.865	0.922

zunehmenden thermodynamischen Limitierungen auf die optimale Prozesskonfiguration und die zugehörige Kaltgaseffizienz  $\eta_{KG}$  untersucht werden.

### 7.1.1 Detaillierungsstufe 1

Detaillierungsstufe DS1 betrachtet lediglich die in Abbildung 5.2 gezeigte Synthesegaserzeugung als thermodynamisch limitierend. DS1 weist daher in Tabelle 7.1 erwartungsgemäß den höchsten Wert für die erreichte Kaltgaseffizienz  $\eta_{KG}$  auf.

Für die Optimierungsvariablen werden wie in Abbildung 7.1 gezeigt sowohl optimale Werte an der oberen oder unteren Grenze als auch zwischen den Grenzen ermittelt. Im Folgenden werden zunächst die Optimierungsvariablen mit Werten an den Grenzen betrachtet.

In der optimalen Prozesskonfiguration wird der Prereformer verwendet, da die relaxierte OV2 den Wert 1 annimmt. So wird der Erdgasstrom vollständig durch den Apparat geführt und mithilfe von Abwärme aus dem Rauchgas bereits teilweise umgesetzt. Im Dampfreformer selbst kann damit der benötigte Wärmestrom auf hohem Temperaturniveau verringert und damit der benötigte Massenstrom an Rauchgas reduziert werden. Zusätzlich wird der gesamte Prozessdampf bereits im Prereformer eingespeist (OV6), um den dort erreichten teilweisen Umsatz zu maximieren.

Die nachfolgende Vorwärmung des Stroms für den Dampfreformer (OV3) erfolgt bis zur oberen Grenze für die Temperatur. Auch hier ist die Nutzung von Abwärme aus dem Rauchgas auf niedrigerem Niveau vorteilhaft, um den benötigten Wärmestrom im nachfolgenden Dampfreformer zu reduzieren. Gleiches gilt für die Vorwärmung der Verbrennungsluft, hier wird ebenfalls die obere Grenze für die Temperatur gewählt (OV10).

Die Zugabe von  $CO_2$  erfolgt vollständig vor der Synthese (OV8) und hat damit keinen Einfluss auf die vorangegangene Synthesegaserzeugung. Generell kann das  $CO_2$  in dem Gesamtprozess zwei Aufgaben erfüllen. Zum einen verschiebt  $CO_2$ , wie auch  $H_2O$ , in Gleichungen (4.31) und (4.32) das Gleichgewicht zur Methanumsetzung auf die Produktseite. Allerdings wird am Optimum klar die Zugabe von  $H_2O$  gegenüber  $CO_2$  zur Steigerung des Umsatzes im Dampfreformer bevorzugt. Zum anderen kann das  $CO_2$  vor

der Synthese zur Einstellung einer günstigen Stöchiometriezahl  $SN$  nach Gleichung (4.35) dienen. Typischerweise wird durch Dampfreformierung, wie in Tabelle 7.3 gezeigt, ein überstöchiometrisches Synthesegas mit  $SN = 3$  erhalten. Durch das gewählte  $CO_2/C$  Verhältnis (OV7) wird hier die Stöchiometriezahl auf  $SN = 2$  eingestellt, um eine möglichst große Ausbeute an Methanol zu gewährleisten. Für das  $CO_2/C$  Verhältnis stellt sich hierbei ein Wert zwischen den Grenzen ein, der für die exakt stöchiometrische Einstellung von  $SN$  benötigt wird. Eine weitere Zugabe von  $CO_2$  würde zwar die gleiche Ausbeute an Methanol erreichen, allerdings würde so zusätzliches, nicht thermisch verwertbares  $CO_2$  über den Purge in den Rauchgasstrom gelangen und das Temperaturniveau im Brenner absenken. Durch die vollständige Einspeisung des  $CO_2$  vor der Synthese (OV8) ist die weitere Aufteilung in der Synthesegaserzeugung (OV9) irrelevant für den Prozess und die Kaltgaseffizienz.

Die Optimierungsvariablen für die Temperatur am Austritt des Dampfreformers (OV4) und der über das  $D/C$  Verhältnis (OV5) festgelegte Prozessdampfstrom nehmen Werte zwischen den gegebenen Grenzen an. Beide Optimierungsvariablen erhöhen maßgeblich den prozesseitig erreichten Gleichgewichtsumsatz im Dampfreformer. Gleichzeitig steigt mit diesen Größen allerdings auch der aus dem Rauchgas benötigte Wärmestrom des Dampfreformers. Um die am Optimum aktiven Nebenbedingungen NB2 und NB3 für Brenner und Rauchgas nicht zu verletzen, muss daher im Brenner ein entsprechender Wärmestrom über die Verbrennung von Erdgas und Purgeströmen bereitgestellt werden. Am Optimum ergibt sich so ein Ausgleich zwischen einem möglichst großen Gleichgewichtsumsatz und einem gleichzeitig möglichst geringen benötigten Wärmestrom.

Als Besonderheit nimmt der Anteil an Erdgas der dem Brenner zugeführt wird (OV1) den Wert 0 an der unteren Grenze an. Der Brenner wird bevorzugt ausschließlich mit den Purgeströmen des Prozesses betrieben und es wird kein Erdgas direkt zum Brenner geführt. Um den benötigten Wärmestrom zu decken, wird dabei nach Tabelle 7.3 im Dampfreformer ein vergleichsweise niedriger Umsatz von  $CH_4$  eingestellt. Das nicht umgesetzte  $CH_4$  gelangt anschließend als inerte Komponente in der Synthese über den Purgestrom vollständig zum Brenner, ohne den hier für DS1 angenommenen Vollumsatz der Synthese zu beeinträchtigen. Die Erwärmung dieses zusätzlich durch den Dampfreformer geführten  $CH_4$  ist zwar energetisch nachteilig, erlaubt jedoch insgesamt einen niedrigeren Gleichgewichtsumsatz im Dampfreformer. Die damit verbundenen positiven Effekte einer niedrigeren Temperatur am Austritt des Dampfreformers (OV4) und eines niedrigeren  $D/C$  Verhältnisses (OV5) überwiegen in diesem Zusammenhang.

### 7.1.2 Detaillierungsstufe 2

Für die Detaillierungsstufe 2 wird zusätzlich die thermodynamische Gleichgewichtslimitierung in der Synthese in Abbildung 5.3 betrachtet. Die zusätzlichen Optimierungsvariablen OV11 bis OV13 für diesen Prozessteil nehmen nach Tabelle 7.1 am Optimum Werte an ihren jeweiligen Grenzen an. Das Recycle-Verhältnis (OV11) wird bis an die obere Grenze erhöht, um den Verlust von noch nicht umgesetzten Edukten über den Purge zu minimieren und damit die in Tabelle 7.3 gezeigte Methanolausbeute in der

Synthese zu maximieren. Durch die Gleichgewichtslimitierung der Synthese in DS2 ergibt sich verglichen mit DS1 eine reduzierte Ausbeute an Methanol. Nicht umgesetzte Edukte im Purge werden allerdings energetisch als Brennstoff genutzt und kompensieren dadurch diesen Effekt teilweise. Der Umsatz der exothermen Gleichgewichtsreaktion zu Methanol wird durch die Synthesetemperatur (OV13) an der unteren Grenze maximiert. Gleichzeitig begünstigt der Synthesedruck (OV12) an der oberen Grenze die volumenverkleinernden Reaktion zu Methanol. Die zusätzliche Nebenbedingung NB4 ist am Optimum nicht aktiv, es wird eine Stöchiometriezahl  $SN \geq 2$  am Reaktoreintritt erreicht.

Rein stöchiometrisch betrachtet ist für eine Stöchiometriezahl  $SN \leq 2$  nach der  $\text{CO}_2$  Zugabe vor dem Synthesekreislauf in Tabelle 7.3 ein noch geringerer Wert am Reaktoreintritt zu erwarten. Durch die Reaktion zu Methanol reichern sich die überstöchiometrisch vorhandenen Komponenten CO und  $\text{CO}_2$  theoretisch weiter an. Als sekundärer Effekt ist hier jedoch zu berücksichtigen, dass leichter flüchtige Komponenten teilweise im Rohmethanol gelöst werden. Dabei wird  $\text{CO}_2$  aufgrund seiner hohen Löslichkeit im Rohmethanol selektiv über den Abscheider aus dem Synthesekreislauf ausgetragen. Dieser Effekt ist ausreichend, um in dem Kreislauf insgesamt einen geringfügigen Überschuss an Wasserstoff und damit eine Stöchiometriezahl  $SN \geq 2$  unmittelbar vor dem Reaktoreintritt zu erzeugen.

Verglichen mit DS1 verbleiben die Optimierungsvariablen OV2, OV3, OV6, OV8 und OV10 in Abbildung 7.1 an den bereits in DS1 erreichten Grenzen. Der dem Brenner zugeführte Teil an Erdgas (OV1) liegt allerdings nicht mehr an der unteren Grenze, da die Synthese in DS2 als Gleichgewichtsreaktion abgebildet wird. Das nach dem Dampfreformer noch vorhandene und inerte  $\text{CH}_4$  reichert sich im Synthesekreislauf an, reduziert die Partialdrücke der übrigen reaktiven Komponenten im Reaktor und verringert so die erreichte Ausbeute an Methanol. Es ist somit in DS2 nachteilig das gesamte im Brenner benötigte  $\text{CH}_4$  mit durch den Dampfreformer zu führen. Ein Teil des dem Prozess zugeführten Erdgases wird daher bereits zu Beginn zum Brenner abgezweigt (OV1). Gleichzeitig wird der in Tabelle 7.3 gezeigte Umsatz von  $\text{CH}_4$  in der Synthesegaserzeugung entsprechend erhöht um die in die Synthese und den Purge eingebrachte Menge an  $\text{CH}_4$  entsprechend zu reduzieren.

Die Optimierungsvariablen OV4 und OV5 im Dampfreformer zeigen wie in DS1 optimale Werte zwischen den jeweiligen Grenzen. Die Temperatur am Austritt des Dampfreformers (OV4) ist gegenüber DS1 leicht erhöht, zudem wird ein deutlich größeres D/C Verhältnis (OV5) gewählt. Beide Veränderungen sorgen für den zuvor erläuterten erhöhten Gleichgewichtsumsatz von  $\text{CH}_4$  im Dampfreformer und reduzieren die Menge an inertem  $\text{CH}_4$  im Synthesekreislauf, erhöhen jedoch den Energiebedarf des Prozesses. Die Nebenbedingungen NB2 und NB3 bleiben wie für DS1 am Optimum aktiv.

Insgesamt wird durch die zusätzliche thermodynamische Limitierung in DS2 sowohl die Ausbeute an Methanol reduziert als auch der Energieverbrauch des Prozesses erhöht. Beide Faktoren reduzieren nach Tabelle 7.1 die Kaltgaseffizienz des Prozesses gegenüber DS1.

### 7.1.3 Detaillierungsstufe 3

Detaillierungsstufe 3 ergänzt den Prozess um die Rektifikation und das Dampfsystem aus den Abbildungen 5.4 bzw. 5.5. Zudem wird der Prozess in DS3 vollständig stofflich und thermisch integriert betrachtet.

Die zusätzlichen Optimierungsvariablen OV14 bis OV19 dienen zur Optimierung der Wärmeintegration im Dampfsystem. Dabei werden mit den Nebenbedingungen NB5 bis NB12 thermodynamisch sinnvolle Rahmenbedingungen gesetzt.

Für die Vorwärmung des MD Kondensats im Dampfsystem wird eine Temperatur zwischen den beiden Grenzen gewählt (OV14), die minimale Temperaturdifferenz (NB7) in dem zugehörigen Wärmeübertrager wird dabei nicht erreicht. Die weitere Temperaturerhöhung auf der HD Schiene (OV15) erfolgt bis zur oberen Grenze. An diesem Punkt wird auch die vorgegebene minimale Temperaturdifferenz (NB8) erreicht, der übertragene Wärmestrom wird so begrenzt.

Der Druck des HD Dampfs (OV16) liegt zwischen den beiden Grenzen. Der Druck steuert im Wesentlichen die erzeugte Menge an HD Dampf. Der verfügbare Wärmestrom im Prozessgasboiler ist vorgegeben, mit steigendem Druck sinkt allerdings die spezifische Verdampfungsenthalpie und damit der erzeugte Massenstrom an Dampf. Der zusätzlich benötigte Wärmestrom zur Anwärmung des am Eintritt noch unterkühlten Kondensats auf die Verdampfungstemperatur spielt dabei eine untergeordnete Rolle. Zur nachfolgenden Überhitzung des Dampfs wird zudem bei höherem Druck ein größerer spezifischer Wärmestrom auf höherem Temperaturniveau benötigt, um einen bestimmten Dampfanteil am Austritt der HD Turbine zu erreichen.

Insgesamt steigt durch den zunehmenden Druck sowohl der absolute HD Dampfstrom als auch der benötigte spezifische Wärmestrom zur Überhitzung signifikant an. Allerdings ergibt sich durch den größeren Dampfstrom, den höheren Druck und die größere Überhitzung allerdings auch eine größere mechanische Leistung der HD Turbine. Der HD Druck und der damit verbundene benötigte Wärmestrom wird daher soweit erhöht, dass die HD Turbine die vom Prozess benötigte mechanische Leistung exakt deckt (NB12).

Die Nebenbedingung für den minimalen Dampfanteil am Austritt der Turbine (NB11) ist aktiv, der HD Dampf wird demnach nur soweit überhitzt (OV18), wie es entsprechend seinem Druck hierfür erforderlich ist. Die Nebenbedingungen für die Überhitzung selbst (NB9 und NB10) sind am Optimum nicht aktiv und beeinflussen das Ergebnis somit nicht. Die Überhitzung des MD Dampfs (OV19) erreicht dabei einen mittleren Wert zwischen den gegebenen Grenzen. Durch eine Überhitzung des Prozessdampfs wird der betragsmäßig gleiche Wärmestrom zur Vorwärmung auf die Eintrittstemperatur des Prereformers eingespart. An welcher Stelle der Wärmestrom aus dem Rauchgas entzogen wird ist für das Optimum hier nicht von Bedeutung, da es an beiden Stellen keine Einschränkung durch aktive oder aktiv werdende Nebenbedingungen gibt.

Für beide Reboiler sind minimale Temperaturdifferenzen einzuhalten (NB5 und NB6). Die Nebenbedingung für Reboiler 1 ist dabei nicht aktiv, da der im Synthesegas

verfügbare Wärmestrom ausreichend ist. Für Reboiler 2 ist die Nebenbedingung aktiv und zur Einhaltung wird zusätzlich MD Sattedampf aus der Reaktorkühlung bereitgestellt (OV17).

Im Vergleich mit DS1 und DS2 verbleiben die Optimierungsvariablen OV2, OV3, OV6, OV8 und OV10 in der Synthesegaserzeugung an den dort erreichten Grenzen, das Gleiche gilt für die in DS2 hinzugekommenen OV11 bis OV13 in der Synthese. Insbesondere das Recycle-Verhältnis (OV11) und der Synthesedruck (OV12) erfordern hierfür eine signifikant hohe mechanische Leistung, die in dem in DS3 vollständig integrierten Gesamtprozess durch die Dampfturbine bereitgestellt werden muss. Selbst unter dieser Rahmenbedingung liegen beide Optimierungsvariablen weiterhin an ihren oberen Grenzen und besitzen weiterhin einen insgesamt positiven Effekt auf die erreichte Kaltgaseffizienz.

Um die zusätzlichen benötigten Wärmeströme zur vollständigen Integration des Gesamtprozesses zu decken, muss dem Brenner zusätzliches Erdgas direkt zugeführt werden (OV1), der Massenstrom an Rauchgas erhöht sich dementsprechend. Insbesondere zur Überhitzung des HD Dampfs für die Dampfturbine wird ein zusätzlicher Wärmestrom und damit ein erhöhter Massenstrom an Rauchgas benötigt<sup>1</sup>.

Der verglichen mit DS2 größere Massenstrom an Rauchgas erlaubt als Nebeneffekt im Dampfreformer eine signifikant höhere Temperatur am Austritt (OV4) unter Einhaltung der geforderten minimalen Temperaturdifferenz (NB2). Dadurch lässt sich verglichen mit DS2 bereits mit einem geringeren  $H_2O/C$ -Verhältnis (OV5) ein höherer Umsatz von Methan erreichen (siehe Tabelle 7.3). Die Nebenbedingungen NB2 und NB3 für das Rauchgas bleiben dabei wie für DS1 und DS2 am Optimum aktiv.

Das geringere  $H_2O/C$ -Verhältnis und die höhere Temperatur am Austritt des Dampfreformers (OV4) verschiebt die exotherme Wassergas-Shift-Reaktion in Gleichung (4.32) auf die Eduktseite. Es wird so ein Synthesegas mit einem deutlich größeren Anteil an CO für die Synthese erzeugt, das jedoch weiterhin eine Stöchiometriezahl  $SN = 3$  aufweist. Das gegenüber DS2 verringerte  $CO_2/C$ -Verhältnis (OV7) führt zu einer höheren Stöchiometriezahl und damit einem geringeren Gesamtkohlenstoffgehalt an CO und  $CO_2$  vor der Synthese, der für den Umsatz zur Verfügung steht.

Durch das gegenüber DS2 gesteigerte  $CO/CO_2$ -Verhältnis wird allerdings in DS3 bei sonst ähnlichen Reaktionsbedingungen eine signifikant höhere kohlenstoffbasierte Methanolausbeute erreicht. Die Stöchiometriezahl im Kreislauf am Reaktoreintritt nimmt aufgrund ihres höheren Werts vor der Synthese und dem größeren Umsatz in der Synthese gegenüber DS2 deutlich zu.

---

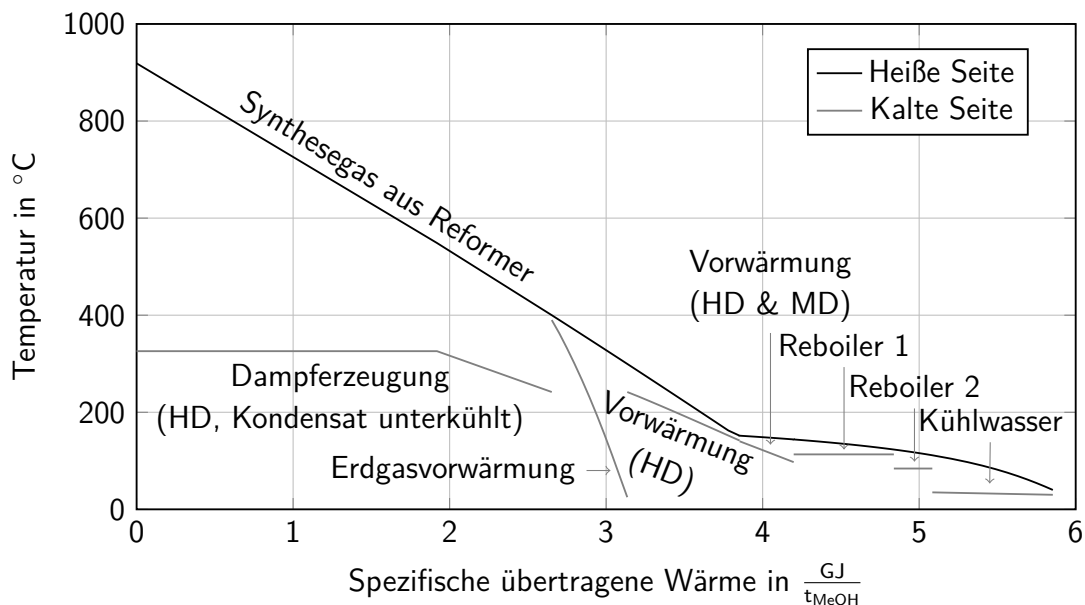
<sup>1</sup> Weiterführende Betrachtungen zur Wärmebilanz des Prozesses sind im nachfolgenden Abschnitt 7.1.4 zu finden.

### 7.1.4 Weiterführende Betrachtungen

Im Folgenden soll der vollständig integrierte Gesamtprozess in Detaillierungsstufe DS3 und die zugehörige Kaltgaseffizienz nach Gleichung (5.1) genauer untersucht werden. Daneben sollen auch Effekte über die unterschiedlichen Detaillierungsstufen hinweg betrachtet und der erhaltene Wert der Kaltgaseffizienz im Vergleich mit Literaturquellen eingeordnet werden.

Die Kaltgaseffizienz wird durch die mit dem bereitgestellten Erdgas insgesamt im Prozess erzielte Ausbeute an Methanol bestimmt. Neben der Verwendung als stoffliches Edukt ist entscheidend, wie viel Erdgas pro erzeugter Tonne Methanol zur Bereitstellung von Wärmeströmen benötigt wird. Für Prozess muss dabei zwischen intern und mit Rauchgas aus dem Brenner gedecktem Wärmeströmen unterschieden werden.

**Intern gedeckter Wärmebedarf** Die benötigten Wärmeströme werden in dem stark integrierten Prozess oft durch interne Wärmeübertragung bereitgestellt. Diese ist insbesondere für die vollständig integrierte Detaillierungsstufe DS3 von Bedeutung. Im Folgenden werden die übertragenen Wärmeströme zur Vergleichbarkeit auf die erzeugte Methanolmenge bezogen und als spezifische Wärme in  $\frac{\text{GJ}}{t_{\text{MeOH}}}$  dargestellt. Als interne Wärmequellen werden dabei sowohl das heiße Synthesegas aus dem Reformier als auch der Reaktorausstrittsstrom in der Synthese betrachtet.



**Abbildung 7.2:**  $(T, Q)$ -Diagramm für die Wärmerückgewinnung aus dem Synthesegas nach dem Dampfreformer in Detaillierungsstufe DS3

Abbildung 7.2 zeigt die Wärmerückgewinnung ausgehend von dem noch heißen Synthesegas am Austritt des Dampfreformers. Der zugehörige Prozessablauf ist in Kapitel 5 erläutert. Die verfügbare spezifische Wärme wird hier schrittweise auf andere Prozessteile übertragen. Dabei teilt sich die Abkühlung des Synthesegases in einen nahezu linearen



ersten Abschnitt ohne Phasenübergang, gefolgt von einem nichtlinearen Verlauf aufgrund von teilweiser Kondensation. Dies ist bedingt durch den hohen Gehalt an Wasser, das den größten Anteil des Kondensats ausmacht und durch die Kondensation nahezu vollständig aus dem Synthesegas abgetrennt werden kann.

Zu Beginn wird die im Prozessgasboiler übertragene Wärme zur Dampferzeugung auf HD-Niveau genutzt. Die großen Temperaturdifferenzen zwischen heißer und kalter Seite sind aus thermodynamischer Sicht nachteilig für die Effizienz des Prozesses. Allerdings ist die Wärmeintegration hier durch eine materialtechnische Randbedingungen limitiert. Laut HOLLAND & DE BRUYN 1996 und HOHMANN 1996 muss die Metalloberfläche auf der Seite des Synthesegases hierfür  $< 450^\circ\text{C}$  gehalten werden, um Korrosionsschäden am Material (engl. „metal dusting“) zu vermeiden. Dies lässt sich durch Siedewasserkühlung und den damit verbundenen hohem Wärmeübergang auf der kalten Seite des Wärmeübertragers realisieren. Als Ergebnis der Prozessoptimierung wird im Prozessgasboiler ein Teil des verfügbaren Wärmestroms zur Vorwärmung von noch unterkühltem Kondensat verwendet, um so den erzeugten Dampfstrom zu begrenzen und dem Bedarf anzupassen.

Die Endtemperatur der nachfolgenden Erdgasvorwärmung ist durch die Betriebstemperatur der Entschwefelung fest vorgegeben. Basierend auf dem  $(T, Q)$ -Diagramm könnten die stark unterschiedlichen Wärmekapazitätsströme und dadurch großen Temperaturdifferenzen in dem zugehörigen Wärmeübertrager eine alternative Verschaltung trotz apparativem Mehraufwand lohnenswert machen.

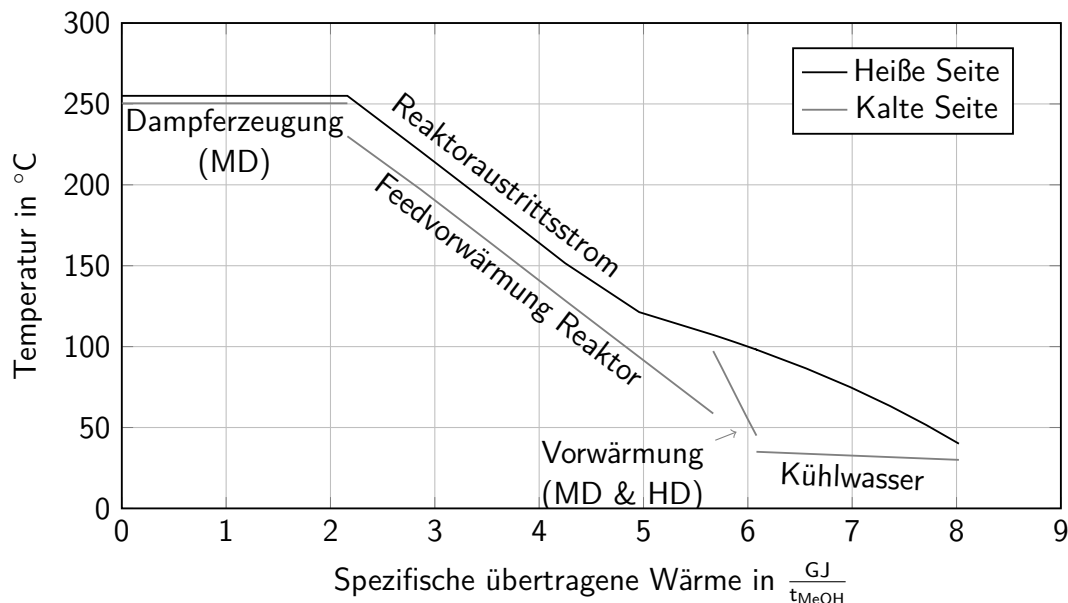
Die Vorwärmung des HD Kondensats für die Dampferzeugung ist durch die geforderte minimale Temperaturdifferenz begrenzt, während die Vorwärmung des HD und MD Kondensats diese knapp nicht erreicht.

Die übrigen Maßnahmen zur Wärmeintegration bewegen sich auf einem vergleichsweise niedrigen Temperaturniveau und weisen gleichzeitig nur geringe Temperaturdifferenzen zwischen heißer und kalter Seite auf. Dabei sorgt das Temperaturniveau und die von Reboiler 1 benötigte spezifische Wärme für das Erreichen der minimalen Temperaturdifferenz.

Erst ab einem sehr niedrigen Temperaturniveau unter  $< 110^\circ\text{C}$  wird die im Synthesegas verbleibende spezifische Wärme ohne weitere Nutzung mithilfe von Kühlwasser aus dem Prozess abgeführt.

In Abbildung 7.3 ist die Wärmeintegration in der Synthese dargestellt. Die Siedewasserkühlung des Reaktors wird effizient zur Erzeugung von Dampf auf MD-Niveau genutzt. Außerhalb des Reaktors ist die Abkühlung des heißen Stroms auch für die Synthese in eine einphasige Abkühlung und einen Bereich mit teilweiser Kondensation unterteilt. Die Temperaturdifferenzen zwischen dem Reaktoraustrittstrom und dem Feed ergeben sich dabei aus der zuvor anhand von Literaturdaten gewählten Reaktoreintrittstemperatur. Ausgehend von dieser Darstellung könnte eine Anhebung der Eintrittstemperatur aus thermodynamischer Sicht sinnvoll sein. Diese würde die Temperaturdifferenzen an dieser Stelle minimieren. Damit würde ein geringerer Teil der Reaktionswärme zur Anwärmung des Reaktionsgemisches im Reaktor benötigt werden und zur Dampferzeugung zur

Verfügung stehen. Allerdings ist aus kinetischer Sicht zu beachten, dass die hohe Reaktionsrate und Wärmeentwicklung am Eintritt des Reaktors unter Umständen nicht ohne Weiteres anders als durch die Zufuhr von kälterem Feed kompensiert werden kann.



**Abbildung 7.3:**  $(T, Q)$ -Diagramm für die Wärmeintegration in der Synthese in Detaillierungsstufe DS3. Nicht dargestellt ist der Anteil der spezifischen Wärme zur weiteren Anwärmung des Reaktionsgemisches im Reaktor; diese Wärme wird während der Reaktion durch den Strom selbst bereitgestellt und erlaubt keine Unterscheidung zwischen heißer und kalter Seite

Die übrige spezifische Wärme im Reaktoraustrittsstrom wird mit einer fest gewählten minimalen Temperaturdifferenz zur maximalen Vorwärmung von MD und HD Kondensat verwendet, bevor der übrige Teil der auf niedrigem Temperaturniveau verfügbaren spezifischen Wärme über Kühlwasser abgeführt wird.

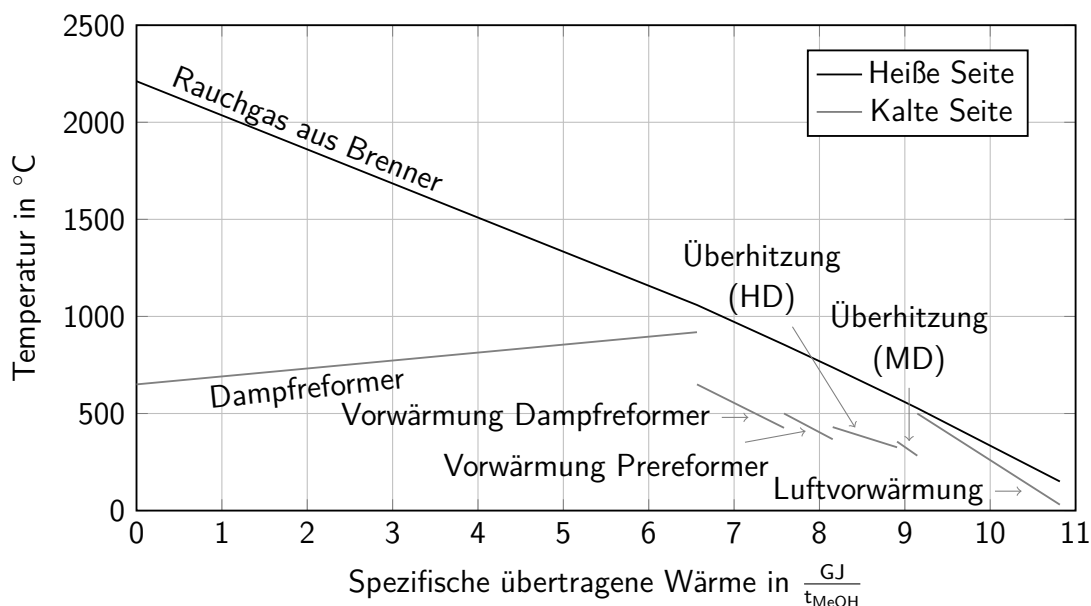
Insgesamt zeigt sich durch die vorangegangenen Betrachtungen, dass der überwiegende Teil der auf hohem Temperaturniveau verfügbaren spezifischen Wärme vor der Abgabe an das Kühlwasser auch tatsächlich prozessintern genutzt wird und so die Effizienz des Prozesses steigert. Dabei zeigt sich, dass der Gesamtprozess auch auf mittlerem und niedrigem Temperaturniveau durch aktive Nebenbedingungen eingeschränkt wird.

Letztendlich steht die intern im Prozess verfügbare spezifische Wärme allerdings ohne den direkten Verbrauch von zusätzlichem Erdgas zur Verfügung und beeinflusst die Kaltgaseffizienz nicht unmittelbar.

**Wärmebedarf aus dem Rauchgas** Entscheidend ist, wie groß der Bedarf an spezifischer Wärme im Brenner und im Rauchgasstroms ausfällt. Dieser wird gedeckt, indem sowohl direkt abgeführtes Erdgas als auch Purgeströme aus Synthese und Rektifikation verbrannt werden. Die thermische Nutzung des zusätzlichen Erdgases

oder der nicht zum Produkt Methanol umgesetzten Komponenten schränkt dabei die erreichte Kaltgaseffizienz ein. Die durch diese Ströme im Brenner und im Rauchgas verfügbare spezifische Wärme erlaubt daher direkte Rückschlüsse auf die Kaltgaseffizienz des Prozesses.

In Abbildungen 5.2 und 5.5 ist die Wärmeintegration des Rauchgases gezeigt. Das zugehörige  $(T, Q)$ -Diagramm ist in Abbildung 7.4 dargestellt.

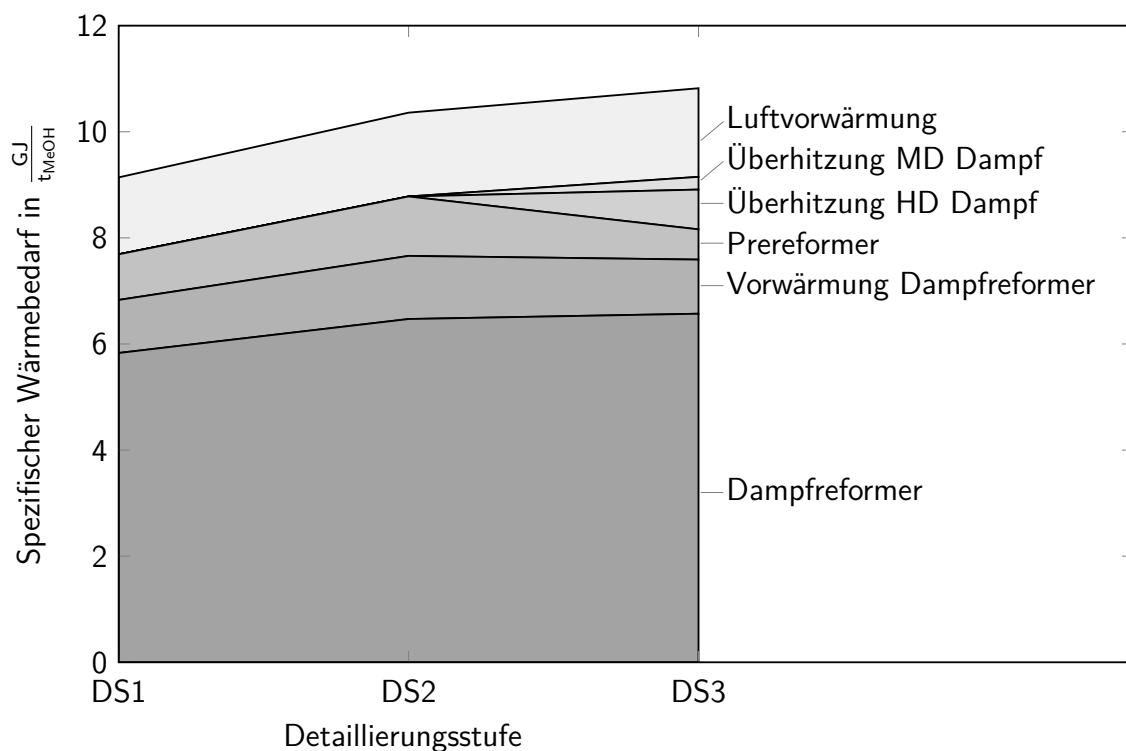


**Abbildung 7.4:**  $(T, Q)$ -Diagramm für die Wärmeintegration des Rauchgasstroms in Detaillierungsstufe DS3

Die nach dem Brenner verfügbare spezifische Wärme wird zunächst zur Befuerung des Dampfreformers genutzt. Die großen Temperaturdifferenzen sind dabei erforderlich, um die Wärme in Form von Strahlung mit hoher Wärmestromdichte auf die Dampfpreformerrohre zu übertragen. Die aus der Literatur übernommene finale Temperaturdifferenz ist dabei ebenfalls apparatetechnisch durch die Art der Wärmebereitstellung bestimmt. In der nachfolgenden Vorwärmung vor dem Eintritt des Dampfreformers und vor dem Prereformer sowie der Überhitzung von HD und MD Dampf ergeben sich trotz zugehörigen Optimierungsvariablen am Optimum wie in den vorigen Abschnitten erläutert deutliche Temperaturdifferenzen zum Rauchgas. Intuitiv wäre eine Reduzierung dieser Temperaturdifferenzen aus lokaler Sicht thermodynamisch vorteilhaft, ist jedoch im Kontext des Gesamtprozesses nicht zielführend. Die ebenfalls optimierte Austrittstemperatur der Luftvorwärmung wird hingegen bis zum Erreichen der vorgegebenen minimalen Temperaturdifferenz genutzt.

Die hier auf der kalten Seite betrachteten Prozessschritte haben einen direkten Einfluss auf den Bedarf an spezifischer Wärme aus dem über den Brenner bereitgestellten Rauchgas und wirken sich so auch direkt auf die Kaltgaseffizienz aus. Aufgrund ihrer Bedeutung werden diese daher im Folgenden gegenübergestellt und abhängig von der betrachteten Detaillierungsstufe näher untersucht.

**Vergleich der Detaillierungsstufen** Abbildung 7.5 zeigt die spezifischen Wärme der Prozessschritte, die Wärme aus dem Rauchgas benötigen. Es ist zu erkennen, dass der Dampfreformer für alle Detaillierungsstufen mit Abstand den größten Bedarf besitzt. Von DS1 auf DS2 steigt der Wert signifikant an, um den Anteil des in der thermodynamisch limitierten Gleichgewichtsreaktion zu Methanol inerten Erdgases für die Synthese zu reduzieren. Da dies mit einem erhöhten D/C-Verhältnis und dadurch einem bezogen auf die erzeugte Methanolmenge erhöhten spezifischen Massenstrom im Dampfreformer erreicht wird, steigt dort der Bedarf an spezifischer Wärme entsprechend an. Der höhere spezifische Massenstrom wirkt sich gleichermaßen auch auf den Bedarf an spezifischer Wärme der Vorwärmung für den Dampfreformer und den Prereformer aus.



**Abbildung 7.5:** Spezifischer Wärmebedarf der mit Rauchgas beheizten Prozessschritte für die unterschiedlichen Detaillierungsstufen DS1 bis DS3

Mit dem Übergang von DS2 auf DS3 wird der Prozess vollständig integriert betrachtet. Die benötigten mechanischen Leistungen werden durch die Turbine im Dampfsystem gedeckt. Die Überhitzung des HD und MD Dampf erfolgt dabei mithilfe des Rauchgases. Insgesamt wird damit zusätzliche spezifische Wärme und damit ein ebenfalls auf die erzeugte Methanolmenge bezogener höherer spezifischer Massenstrom an Rauchgas benötigt. Entgegen der Erwartung wird dabei nicht nur einfach ein zusätzlich erforderlicher Wärmestrom aus dem Rauchgas entzogen. Vielmehr ergibt sich durch den überhitzten Prozessdampf auf MD-Niveau auch ein reduzierter Bedarf an spezifischer Wärme in der Vorwärmung des Dampfreformers und im Prereformer. Der zusätzliche Bedarf für DS3 in Abbildung 7.5 fällt so in der Summe für diese vier Prozessschritte betrachtet deutlich geringer aus als erwartet.

Auch generell wirkt sich die Bereitstellung zusätzlicher Wärme über einen höheren Massenstrom an Rauchgas nicht nur negativ aus. Vielmehr stehen den bestehenden Prozessströmen dadurch im Gegenzug auch höhere rauchgasseitige Temperaturen zur Verfügung. Qualitativ kann diese erhöhte Temperatur durch den Dampfreformer genutzt werden, um unter Einhaltung von NB2 eine vorteilhafte höhere Austrittstemperatur einzustellen. Quantitativ wird so der negative Effekt des größeren Gesamtwärmebedarfs teilweise durch interne Nutzung der zusätzlichen Wärme ausgeglichen.

Die Luftvorwärmung nimmt in dem Gesamtprozess eine Sonderrolle ein. Sie erhöht die Temperatur der Verbrennungsluft jeweils an die obere Grenze. Der für DS1 bis DS3 steigende Wärmebedarf des Prozesses erhöht den Massenstrom an Rauchgas und sorgt damit auch für einen proportional größeren Wärmebedarf zur Luftvorwärmung. Allerdings deckt dieser Wärmeeintrag im Wesentlichen nur den eigenen Wärmebedarf, ähnlich wie bei einem Wärmeübertrager zwischen Feed und Produkt eines Reaktors. Quantitativ wird somit insgesamt keine zusätzliche Wärme von außen benötigt. Qualitativ steht der tatsächlich im Prozess genutzte Anteil des Rauchgases durch die Anwärmung der Verbrennungsluft allerdings auf einem deutlich höheren Temperaturniveau zur Verfügung. Dies erlaubt die Einhaltung der minimalen Temperaturdifferenzen bei der Wärmebereitstellung für die übrigen Prozessschritte, ohne eine unnötig hohe Rauchgasendtemperatur zur Umgebung zu erzeugen.

**Einordnung der erhaltenen Kaltgaseffizienz** In der Literatur wird von BIEDERMANN et al. 2006 und OTT et al. 2012 eine Kaltgaseffizienz von 67% für die erdgasbasierte Produktion von Methanol angegeben. Dagegen erscheint die in dieser Arbeit für den vollständig integrierten Gesamtprozess ermittelte Kaltgaseffizienz  $\eta_{KG}$  in Tabelle 7.1 hoch. Allerdings dienen die hier gewählten Randbedingungen zur methodischen Untersuchung und nicht zur exakten Abbildung einer realen Anlage. So werden beispielsweise die Einsatzstoffe  $CH_4$  und  $CO_2$  als Reinstoffe ohne Verunreinigungen abgebildet und Nebenprodukte für die Synthese und die nachfolgende Rektifikation nicht berücksichtigt. In realen Anlagen ergeben sich zudem insbesondere für die Feuerung des Dampfreformers signifikante Wärmeverluste zu Umgebung, die zusammen mit den übrigen Effekten die Kaltgaseffizienz des Prozesses weiter senken. Der hier ermittelte optimale Wert der Kaltgaseffizienz  $\eta_{KG}$  kann daher als eine Art thermodynamische Obergrenze für den betrachteten Prozess angesehen werden.

## 7.2 Evaluation der Optimierungsprogramme

Nachfolgend wird die Eignung der in Abschnitt 4.2 vorgestellten Optimierungsprogramme zur Prozessoptimierung anhand der Detaillierungsstufen DS1 bis DS3 evaluiert. Zunächst werden sämtliche Beurteilungskriterien aus Abschnitt 4.2.4 herangezogen und der Einfluss der Startpunkte auf die Ergebnisse diskutiert. Parallel dazu wird das geeignetste Beurteilungskriterium für die Optimierungsprogramme identifiziert.

Im Anschluss wird überprüft, inwieweit dieses Beurteilungskriterium für die Optimierungsprogramme von sekundären Effekten abhängt. Als Nebenaspekt werden dabei auch die betrachteten Optimierungsprobleme selbst anhand der numerischen Ergebnisse charakterisiert.

Im letzten Abschnitt erfolgt eine abschließende Beurteilung und Empfehlung für die Anwendung der Optimierungsprogramme zur Prozessoptimierung.

### 7.2.1 Vergleich anhand der Beurteilungskriterien

Im Folgenden werden die von den Optimierungsprogrammen erreichten Werte der Beurteilungskriterien aus Abschnitt 4.2.4 betrachtet. Die zugehörigen numerischen Ergebnisse sind in Tabelle 7.4 sowie 7.5 und Abbildung 7.6 dargestellt, die Rohdaten sind im Anhang in Tabelle A.1 zu finden.

**Beste erreichte Kaltgaseffizienz** Zunächst soll untersucht werden, welche der Optimierungsprogramme eine Kaltgaseffizienz  $\eta_{KG}$  nahe der insgesamt besten gefundenen Lösung erreichen. Hierzu wird die jeweils beste erreichte Kaltgaseffizienz  $\eta_{KG,beste}$  in Tabelle 7.4 betrachtet. Die meisten der Optimierungsprogramme zeigen hier für Detaillierungsstufe DS1 bis DS3 abgesehen von einer nicht praktisch relevanten Abweichung jeweils die selben Werte. Diese Kaltgaseffizienzen liegen sehr nahe an den in Abschnitt 7.1 für DS1 bis DS3 beschriebenen besten Lösungen. Eine geringe Abweichung ergibt sich für COBYLA in DS1. Die große Abweichung für GA in sämtlichen Detaillierungsstufen zeigt, dass GA in keinem der betrachteten Optimierungsprobleme das gesuchte Optimum auffinden konnte. GA ist daher für den hier betrachteten Ansatz zur Prozessoptimierung am geringsten geeignet. Für die übrigen Optimierungsprogramme ergibt sich näherungsweise jeweils die beste erreichte Kaltgaseffizienz und damit keine praxisrelevante Abstufung durch diese Größe.

**Mittelwert der Kaltgaseffizienz und Anteil guter Lösungen** Für sämtliche gültigen Lösungen, d. h. mit Einhaltung der Nebenbedingungen, sind die Mittelwerte der Kaltgaseffizienzen  $\bar{\eta}_{KGE}$  in Tabelle 7.4 gezeigt. Die Werte korrelieren zumeist mit dem Anteil  $\varphi_{gut}$  der guten Lösungen, die mindestens 99.9% des besten Zielfunktionswerts der jeweiligen Detaillierungsstufe aufweisen.

Die mittlere erreichte Kaltgaseffizienz  $\bar{\eta}_{KGE}$  und der Anteil  $\varphi_{gut}$  der guten Lösungen unterscheiden sich hier je nach Optimierungsprogramm deutlich. In DS1 erreichen nur die gradientenbasierten Optimierungsprogramme mit zentralen Differenzenquotienten  $fmincon(z)$ , IPOPT(z) und das ableitungsfreie Optimierungsprogramm CMA-ES Mittelwerte nahe denen der besten Lösungen sowie einen großen Anteil  $\varphi_{gut}$  an guten Lösungen.

In DS2 erreichen dies zusätzlich die Varianten mit vorwärtsgerichteten Differenzenquotienten  $fmincon(v)$  und IPOPT(v). COBYLA zeigt im Gegensatz zu DS1 nun

**Tabelle 7.4:** Numerische Ergebnisse der Optimierungsprogramme für die Detaillierungsstufen DS1 bis DS3; mittlere benötigte Zeit  $\bar{t}$  und mittlere Zahl der Simulationsaufrufe  $\bar{n}_{\text{Sim}}$  aller Lösungen mit relativer Standardabweichung, mittlere  $\bar{\eta}_{\text{KG}}$  und beste  $\eta_{\text{KG,beste}}$  Kaltgaseffizienz aller gültigen Lösungen sowie Anteil  $\varphi_{\text{gültig}}$  der gültigen (Nebenbedingungen erfüllt) und  $\varphi_{\text{gut}}$  der guten Lösungen (zusätzlich 99.9% des besten Zielfunktionswerts erreicht)

Bezeichnung	Zeit $\bar{t}$ in min	Aufrufe $\bar{n}_{\text{Sim}}$	Kaltgaseffizienz in %		Anteil Lösungen	
			$\bar{\eta}_{\text{KG}}$	$\eta_{\text{KG,beste}}$	$\varphi_{\text{gültig}}$	$\varphi_{\text{gut}}$
<b>Detaillierungsstufe 1</b>						
fmincon(v)	1.1 ± 43%	389 ± 42%	71.939	74.034	0.98	0.48
fmincon(z)	1.0 ± 27%	369 ± 28%	73.868	74.033	1.00	0.82
IPOPT(v)	1.9 ± 79%	734 ± 81%	73.598	74.034	0.78	0.52
IPOPT(z)	3.5 ± 58%	1413 ± 57%	73.889	74.032	1.00	0.92
COBYLA	1.1 ± 26%	370 ± 26%	73.106	73.984	0.90	0.10
CMA-ES	58.6 ± 43%	20004 ± 42%	73.986	74.035	1.00	0.98
GA	66.7 ± 21%	22367 ± 20%	73.371	73.570	1.00	0.00
<b>Detaillierungsstufe 2</b>						
fmincon(v)	6.2 ± 38%	506 ± 35%	70.797	72.075	1.00	0.90
fmincon(z)	9.0 ± 86%	751 ± 81%	70.791	72.075	1.00	0.90
IPOPT(v)	15.7 ± 43%	1458 ± 42%	72.072	72.074	1.00	1.00
IPOPT(z)	15.1 ± 34%	1348 ± 34%	72.074	72.075	1.00	1.00
COBYLA	32.9 ± 137%	1398 ± 120%	72.061	72.075	0.70	0.68
CMA-ES	639.8 ± 33%	39144 ± 34%	72.000	72.075	1.00	0.96
GA	1083.0 ± 45%	59790 ± 56%	71.602	71.869	1.00	0.00
<b>Detaillierungsstufe 3</b>						
fmincon(v)	10.8 ± 59%	695 ± 60%	70.039	70.809	0.58	0.20
fmincon(z)	20.1 ± 74%	1336 ± 73%	70.686	70.810	0.72	0.52
IPOPT(v)	67.6 ± 69%	4367 ± 66%	70.759	70.807	0.74	0.54
IPOPT(z)	40.3 ± 38%	2829 ± 37%	70.809	70.810	0.92	0.92
COBYLA	30.8 ± 47%	1352 ± 43%	70.266	70.810	0.82	0.26
CMA-ES	883.4 ± 55%	38801 ± 63%	70.786	70.809	1.00	0.98
GA	1069.7 ± 37%	51448 ± 38%	69.721	70.018	1.00	0.00

ebenfalls gute Ergebnisse und profitiert anscheinend sogar von der gesteigerten Zahl an Optimierungsvariablen und Nebenbedingungen.

Mit dem Wechsel auf die deutlich komplexere DS3 zeigt sich eine generelle Verschlechterung für sämtliche Optimierungsprogramme. Nur IPOPT(z) und CMA-ES erreichen weiterhin im Mittel Kaltgaseffizienzen nahe der besten Lösung und weisen gleichzeitig einen hohen Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen auf. IPOPT(v) mit vorwärtsgerichteten Differenzenquotienten zeigt dabei nur geringfügig schlechtere Kaltgaseffizienzen  $\eta_{\text{KGE}}$  als IPOPT(z). Gegenüber IPOPT weist fmincon signifikant schlechtere Ergebnisse auf, allerdings mit der gleichen Tendenz zur Verbesserung mit zentralen Differenzenquotienten. COBYLA erreicht Ergebnisse im unteren Bereich der gradientenbasierten Optimierungsprogramme.

Anhand der mittleren Kaltgaseffizienz  $\bar{\eta}_{\text{KG}}$  und dem Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen lassen sich demnach deutliche, praktisch relevante Unterschiede zwischen den Optimierungsprogrammen feststellen. Die Unterschiede sind dabei abhängig von der betrachteten Detaillierungsstufe.

**Anteil gültiger Lösungen** Der Anteil  $\varphi_{\text{gültig}}$  der gültigen Lösungen, d. h. mit Einhaltung der Nebenbedingungen, fällt in DS1 und DS2 für alle Optimierungsprogramme durchgehend sehr hoch aus. Lediglich fmincon(v), IPOPT(v) und COBYLA zeigen dabei geringe Schwächen. In DS3 sorgt die große Zahl zusätzlicher Nebenbedingungen und die starke interne Kopplung des Optimierungsproblems allgemein für deutlich geringere Werte von  $\varphi_{\text{gültig}}$ . IPOPT weist dabei generell höhere Werte auf als fmincon, auch hier ist jedoch für beide die Verwendung der zentralen Differenzenquotienten in DS3 vorteilhaft.

Die Behandlung der Nebenbedingungen unterscheidet sich für die Optimierungsprogramme meist deutlich. Je nach Ansatz wird die Einhaltung oder Verbesserung der Verletzung der Nebenbedingungen dabei anders priorisiert und so ein direkter Vergleich erschwert. Für die gradientenbasierten Verfahren kann hier allerdings festgehalten werden, dass der Barriere- bzw. Innere-Punkte-Algorithmus von IPOPT im Vergleich die besten Ergebnisse liefert. Dies deutet darauf hin, dass der zugehörige in Abschnitt 4.2.1 beschriebene Ansatz zur Beschreibung der Nebenbedingungen insbesondere für komplexere Optimierungsprobleme Vorteile aufweist.

Das Optimierungsprogramm GA ist hier aufgrund seines hohen Werts von  $\varphi_{\text{gültig}}$  zumindest für das Auffinden von gültigen, wenn auch nicht optimalen Lösungen geeignet.

Daneben deutet die Einhaltung der Nebenbedingungen aller Lösungen von CMA-ES darauf hin, dass der Wert des Strafparameters  $\mu$  aus Gleichung (4.20) nach Tabelle 6.1 ausreichend groß gewählt wurde.

**Zeit und Zahl der Simulationsaufrufe** Die im Mittel benötigte Zeit  $\bar{t}$  für eine Lösung in Tabelle 7.4 besitzt eine große Bedeutung für die praktische Anwendung und



unterscheidet sich je nach Optimierungsprogramm und Optimierungsproblem signifikant. `fmincon` erreicht hier mit vorwärtsgerichteten und zentralen Differenzenquotienten im Vergleich durchgehend die geringsten Werte. `COBYLA` weist in DS1 und DS3 den nächstgrößeren Wert auf. Die im Mittel benötigte Zeit von `IPOPT` ist bis auf DS2 noch etwas länger als für `COBYLA`, bewegt sich allerdings in der gleichen Größenordnung. Dabei benötigt `IPOPT(z)` eine signifikant längere Zeit für eine Lösung als `IPOPT(v)`. `CMA-ES` folgt erst ein bis zwei Größenordnungen darüber und mit der längsten benötigten Zeit anschließend `GA`.

Auch anhand der im Mittel benötigten Zeit  $\bar{t}$  für eine Lösung ergeben sich damit signifikante Unterschiede zwischen den Optimierungsprogrammen, die von Bedeutung für die praktische Anwendung und damit die abschließende Beurteilung sind.

Die zugehörige relative Standardabweichung der benötigten Zeit  $\bar{t}$  für eine Lösung bewegt sich in einem Bereich von 21 – 137 %, allerdings zeigt sich hier kein klarer Trend abhängig von Detaillierungsstufe oder Optimierungsprogramm.

Die Zeit  $\bar{t}$  für eine Lösung korreliert daneben stark mit der mittleren Zahl der Simulationsaufrufe  $\bar{n}_{\text{sim}}$ . Die meisten der Betrachtungen zur Zeit  $\bar{t}$  lassen sich damit auch auf die Simulationsaufrufe  $n_{\text{sim}}$  übertragen. Unterschiede zwischen den beiden Größen sind anhand der aus den beiden Größen berechneten benötigten Zeit pro Simulationsaufruf in Tabelle 7.5 zu erkennen. Diese Größe ist jedoch keine direkte Eigenschaft der Optimierungsprogramme sondern vor allem der Optimierungsprobleme und wird erst im nachfolgenden Abschnitt 7.2.2 genauer erläutert.

**Einfluss des Startpunkts** Für die Prozessoptimierung ist sowohl eine geringe Zeit  $\bar{t}$  als auch ein hoher Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen gewünscht. In Abbildung 7.6 sind daher beide Größen zusammen veranschaulicht. Die erreichten Werte sind jeweils aufgeschlüsselt nach den Startpunkten SP1 bis SP10 und entsprechend Tabelle 7.4 im Mittel gezeigt. Für `GA` wird per Definition kein expliziter Startpunkt vorgegeben, daher ist lediglich der Mittelwert der erhaltenen Lösungen dargestellt.

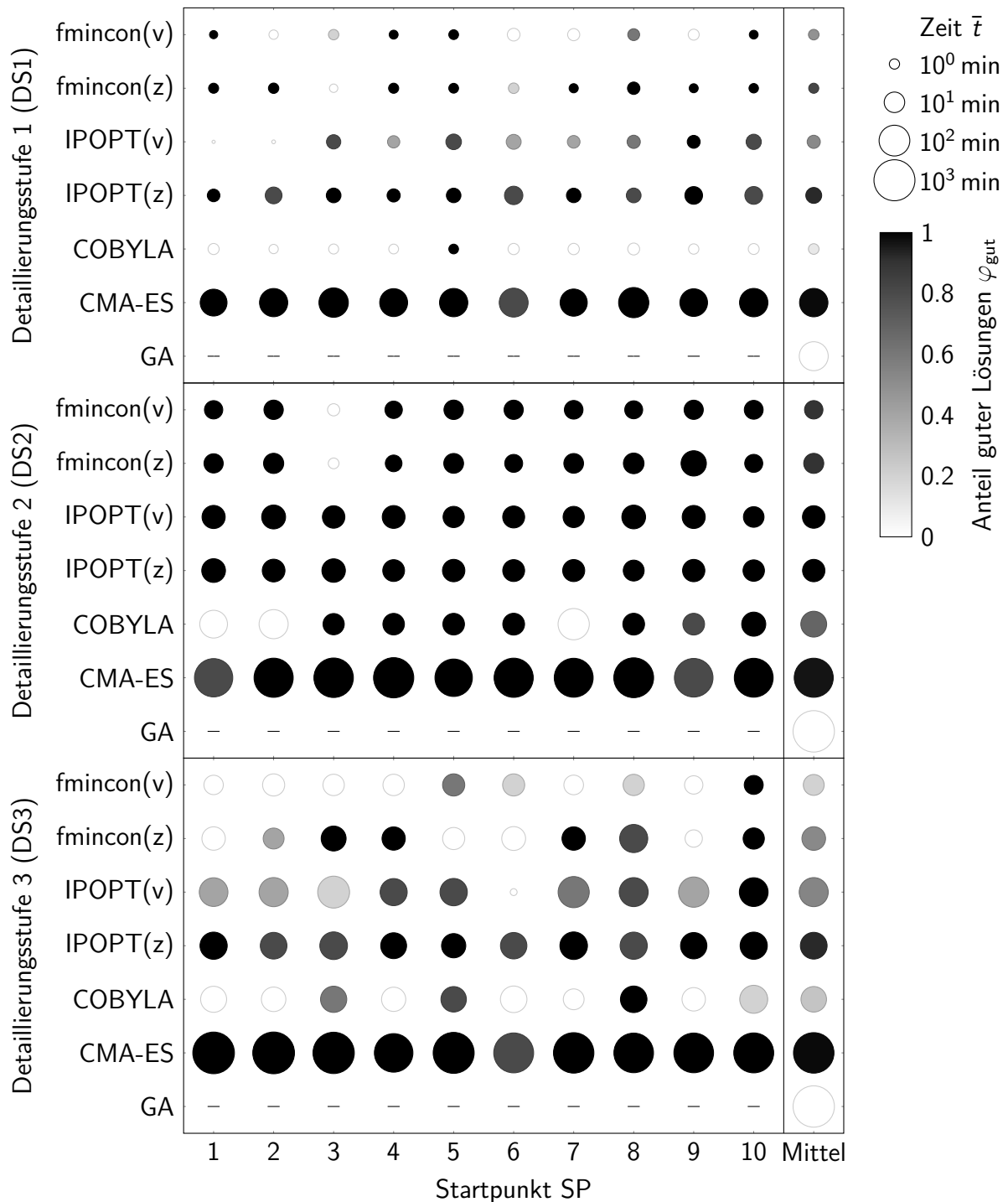
Die von den Optimierungsprogrammen benötigte Zeit  $\bar{t}$  für eine Lösung zeigt hier über die verschiedenen SP bis auf wenige Ausnahmen nur geringfügige Abweichungen von dem zugehörigen Mittelwert. Die in den vorherigen Abschnitten beschriebenen Unterschiede in den Mittelwerten dominieren daher auch die Abstufungen der Optimierungsprogramme anhand der Zeit  $\bar{t}$  über die Startpunkte in Abbildung 7.6.

Den größten Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen unabhängig von dem betrachteten Startpunkt und der Detaillierungsstufe zeigen `IPOPT(z)` und `CMA-ES`. Die zugehörige Zeit  $\bar{t}$  ist dabei für `CMA-ES` sowohl über die Startpunkte als auch im Mittel um Größenordnungen höher als für `IPOPT(z)`. Für `IPOPT(z)` streut die Zeit  $\bar{t}$  in DS1 am stärksten über die Startpunkte, ansonsten ergeben sich für beide Optimierungsprogramme nur geringe Abweichungen von den jeweiligen Mittelwerten.

Eine ähnlich geringe Abhängigkeit der Zeit  $\bar{t}$  und des Anteils  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen vom Startpunkt zeigt `IPOPT(v)` für DS2. In DS1 und DS3 wird allerdings für zahlreiche

**Tabelle 7.5:** Zusätzliche numerische Ergebnisse der Optimierungsprogramme für die Detaillierungsstufen DS1 bis DS3; im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für das Auffinden einer guten Lösung, Anteil der unnötigen Simulationsaufrufe  $\chi_{\text{gut,unnötig}}$  die für gute Lösungen über 99.9% des global besten Zielfunktionswerts hinausgehen, durchschnittliche Zeit pro Simulationsaufruf sowie Anteile  $\chi_{\text{Fehler}}$  und  $\varphi_{\text{Fehler}}$  aller Simulationsaufrufe bzw. Lösungen mit Simulationsfehlern

Bezeichnung	$\bar{t}_{\text{gut}}$ in min	$\chi_{\text{gut,unnötig}}$	Zeit pro Aufruf in s	$\chi_{\text{Fehler}}$	$\varphi_{\text{Fehler}}$
<b>Detaillierungsstufe 1 (DS1)</b>					
fmincon(v)	2.2	0.52	0.165	0.002	0.00
fmincon(z)	1.2	0.33	0.156	0.003	0.00
IPOPT(v)	3.7	0.73	0.156	0.138	0.22
IPOPT(z)	3.9	0.65	0.151	0.003	0.00
COBYLA	10.9	0.54	0.177	0.102	0.10
CMA-ES	59.8	0.63	0.176	0.000	0.00
GA	-	-	0.179	0.004	0.00
<b>Detaillierungsstufe 2 (DS2)</b>					
fmincon(v)	6.9	0.66	0.739	0.002	0.00
fmincon(z)	10.0	0.52	0.719	0.001	0.00
IPOPT(v)	15.7	0.84	0.648	0.000	0.00
IPOPT(z)	15.1	0.71	0.672	0.000	0.00
COBYLA	48.3	0.59	1.410	0.293	0.30
CMA-ES	666.5	0.83	0.981	0.000	0.00
GA	-	-	1.087	0.000	0.00
<b>Detaillierungsstufe 3 (DS3)</b>					
fmincon(v)	54.1	0.57	0.933	0.178	0.16
fmincon(z)	38.7	0.42	0.904	0.122	0.12
IPOPT(v)	125.1	0.79	0.928	0.110	0.10
IPOPT(z)	43.8	0.67	0.854	0.009	0.00
COBYLA	118.5	0.45	1.366	0.086	0.14
CMA-ES	901.5	0.50	1.366	0.001	0.00
GA	-	-	1.247	0.002	0.00



**Abbildung 7.6:** Grafische Darstellung der numerischen Ergebnisse für die Detaillierungsstufen DS1 bis DS3 mit den betrachteten Optimierungsprogrammen und Startpunkten; gezeigt ist die im Mittel für jeden Startpunkt im Mittel benötigte Zeit  $\bar{t}$  in min (logarithmisch skaliertes Durchmesser) und der Anteil der guten Lösungen, die 99.9% des besten Zielfunktionswerts erreichen (Graustufen); für GA ist die explizite Vorgabe eines Startpunkts nicht vorgesehen, es wird lediglich der Mittelwert aller erhaltenen Lösungen dargestellt

Startpunkte nur mit geringerer Erfolgsquote eine gute Lösung gefunden. Hier ergeben sich durchgehend Nachteile gegenüber IPOPT( $z$ ) durch die Verwendung der vorwärtsgerichteten Differenzenquotienten. Zudem gibt es besonders ungeeignete Startpunkte, SP1 und SP2 in DS1 und SP6 in DS3, für die überhaupt keine gültige Lösung gefunden wird. An diesen Startpunkten erfolgt auch ein rascher Abbruch der Optimierung, da nur eine sehr geringe Zeit  $\bar{t}$  für die Berechnung benötigt wird. Ansonsten ergibt sich die größte Streuung der Zeit  $\bar{t}$  wie für IPOPT( $z$ ) auch hier in DS1.

Eine ebenfalls sehr geringe Zeit  $\bar{t}$  ohne gültige Lösung zeigen  $\text{fmincon}(v)$  und  $\text{fmincon}(z)$  in DS2 für SP3. Ansonsten werden in dieser Detaillierungsstufe durchgehend gute Ergebnisse für die beiden Optimierungsprogramme erhalten. Ähnlich wie IPOPT( $v$ ) hat  $\text{fmincon}$  generell Probleme in DS1 und DS3, für zahlreiche Startpunkte werden überhaupt keine guten Lösungen gefunden. Im Mittel zeigt  $\text{fmincon}(z)$  bessere Ergebnisse, allerdings nicht durchgehend für alle SP. Insbesondere in DS3 zeigen beide Varianten von  $\text{fmincon}$  deutlich unterschiedliches Verhalten. So wird für viele SP, in denen  $\text{fmincon}(z)$  einen großen Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen aufweist, für  $\text{fmincon}(v)$  keine gute Lösung gefunden und umgekehrt. Es kann demnach nur im Mittel ein Vorteil für die zentralen Differenzenquotienten in  $\text{fmincon}(z)$  ausgemacht werden. Bis auf DS2 zeigt sich zudem keine allzu starke Streuung der Zeit  $\bar{t}$  über die SP. SP für die überhaupt keine gültige Lösung gefunden wird, benötigen bis auf DS2 zudem keine auffällig kurze oder lange Zeit  $\bar{t}$ .

COBYLA zeigt eine ausgeprägte Abhängigkeit von dem verwendeten SP. In DS1 werden nur für SP5 überhaupt gute Lösungen gefunden, dort allerdings durchgehend. Für DS2 werden in 8 von 10 Fällen durchgehend gute Lösungen erhalten, an den übrigen beiden Startpunkten überhaupt keine. Für das komplexeste Optimierungsproblem in DS3 wird dagegen nur noch für 3 Startpunkte ein großer Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen erhalten. Insgesamt schneidet COBYLA allerdings hier bezüglich  $\varphi_{\text{gut}}$  zum einzigen Mal besser ab als das gradientenbasierte Optimierungsprogramm  $\text{fmincon}(v)$ . Die Zeit  $\bar{t}$  streut dabei nur in DS3 signifikant, für DS2 wird dagegen eine besonders lange Zeit für Startpunkte ohne gute Lösung benötigt.

In Abbildung 7.6 lassen sich keine Startpunkte erkennen, für die alle Optimierungsprogramme besonders gute oder schlechte Ergebnisse zeigen. Dies deutet darauf hin, dass die Abhängigkeit von den Startpunkten auf Unterschiede in den Optimierungsprogrammen selbst zurückgeführt werden kann.

**Erwartete Zeit für eine gute Lösung** Aus den Betrachtungen der Zeit  $\bar{t}$  oder dem Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen lässt sich prinzipiell jeweils eine Reihung der Optimierungsprogramme ableiten. Allerdings würde beispielsweise eine Reihung nach der Zeit  $\bar{t}$  vernachlässigen, wie wahrscheinlich die erhaltenen Lösungen auch tatsächlich die gewünschte Güte aufweisen. Dieser Umstand wird auch anhand von Abbildung 7.6 graphisch ersichtlich und ist z. B. für COBYLA in DS1 problematisch, da zwar eine geringe Zeit  $\bar{t}$  pro Lösung benötigt aber nur ein sehr geringer Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten

Lösungen erhalten wird. Daher soll im weiteren Verlauf eine aus diesen beiden Größen abgeleitete Größe zur Beurteilung untersucht werden.

Die im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung ist nach Gleichung (4.23) definiert und leitet sich aus der Zeit  $\bar{t}$  und dem Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen ab. Die erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle 7.5 aufgeführt. Im Folgenden werden die Unterschiede in der Reihung der Optimierungsprogramme basierend auf der im Mittel benötigten Zeit  $\bar{t}$  und der im Mittel erwarteten Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung beschrieben.

Tendenziell ergeben sich dabei für  $\bar{t}_{\text{gut}}$  ähnliche Abstufungen über mehrere Größenordnungen wie auch für die Zeit  $\bar{t}$ . Für CMA-ES zeigt sich aufgrund des hohen Werts von  $\varphi_{\text{gut}}$  durchgehend nur ein sehr geringer absoluter Unterschied in den beiden Beurteilungskriterien. Für sämtliche Detaillierungsstufen DS1 bis DS3 wird hier die längste im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung erreicht. Für GA wurde überhaupt keine gute Lösung gefunden, daher kann kein Wert für  $\bar{t}_{\text{gut}}$  angegeben werden.

In DS1 schneidet `fmincon` auch bezüglich  $\bar{t}_{\text{gut}}$  weiterhin besser ab als IPOPT, COBYLA ist allerdings aufgrund seines geringen Anteils  $\varphi_{\text{gut}}$  an guten Lösungen nun schlechter als die beiden gradientenbasierten Optimierungsprogramme. Für `fmincon` ergibt sich verglichen mit der Zeit  $\bar{t}$  ein noch deutlicher ausgeprägter Vorteil bei der Verwendung von zentralen Differenzenquotienten. Für IPOPT ergibt sich ein ähnlicher Trend, der Vorteil der zentralen Differenzenquotienten fällt für  $\bar{t}_{\text{gut}}$  jedoch geringer aus.

In DS2 bleibt die grundlegende Abstufung wie für die Zeit  $\bar{t}$  aufgrund der generell konstant hohen Werte von  $\varphi_{\text{gut}}$  bestehen, es ergeben sich lediglich kleine relative Unterschiede zwischen den Optimierungsprogrammen.

In DS3 führen die stark unterschiedlichen Werte von  $\varphi_{\text{gut}}$  dagegen zu einer deutlichen Veränderung in der Reihung gegenüber der Zeit  $\bar{t}$ . Bei den gradientenbasierten Optimierungsprogrammen ergeben sich dabei sehr deutliche Vorteile durch die Verwendung der zentralen Differenzenquotienten. Der Vorteil von `fmincon(z)` gegenüber `IPOPT(z)` wird aufgrund des geringen Anteils  $\varphi_{\text{gut}}$  guter Lösungen signifikant kleiner. Die beiden Optimierungsprogramme erreichen somit in DS3 vergleichbare Werte für  $\bar{t}_{\text{gut}}$ . COBYLA fällt gegenüber diesen gradientenbasierten Optimierungsprogrammen zurück und weist nur einen ähnlichen Wert wie `IPOPT(v)` auf.

Insgesamt zeigen die gradientenbasierten Optimierungsprogramme `fmincon` und IPOPT auch für die im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung die besten Ergebnisse und profitieren von dem zusätzlichen Informationsgehalt der Gradienten. Dabei wird die Verwendung zentraler Differenzenquotienten mit der von DS1 bis DS3 steigenden Komplexität des Optimierungsproblems immer wichtiger. Das ableitungsfreie Optimierungsprogramm COBYLA erreicht aufgrund des geringen Anteils guter Lösungen in der Regel schlechtere Werte. CMA-ES gewinnt für  $\bar{t}_{\text{gut}}$  aufgrund seiner durchgehend und insbesondere in DS3 hohen  $\varphi_{\text{gut}}$  Werte relativ zu den übrigen Optimierungsprogrammen. Wie in Abschnitt 4.2.2 beschrieben, wird für CMA-ES eine Population an Lösungen weiterentwickelt, die zu einer erhöhten Zuverlässigkeit des Optimierungsprogramms für unterschiedliche Startpunkte führt. Die von CMA-ES erreichten Werte für die im Mittel

erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung liegen allerdings weiterhin eine Größenordnung über denen der übrigen Optimierungsprogramme.

### 7.2.2 Einfluss sekundärer Effekte

Die im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung kombiniert die Zeit  $\bar{t}$  für eine Lösung und den Anteil  $\varphi_{\text{gut}}$  der guten Lösungen zu einem praxisrelevanten Beurteilungskriterium. Für eine abschließende Beurteilung der Ergebnisse und einer daraus abgeleiteten Empfehlung soll allerdings sichergestellt werden, dass die betrachtete Entscheidungsgröße auch primär durch das Optimierungsprogramm selbst bestimmt wird. Im Folgenden wird daher diskutiert, in welcher Größenordnung sich der Einfluss verschiedener sekundärer Effekte auf im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung bewegt.

**Toleranzen der Abbruchkriterien** Die in Abschnitt 6.3 vorgestellten Toleranzen für die Abbruchkriterien wurden in Vorstudien ermittelt. Diese wurden angepasst, um eine ausreichende Genauigkeit der Lösungen zu gewährleisten. Eine zu klein gewählte Toleranz kann allerdings zu Nachteilen für die jeweiligen Optimierungsprogramme führen. So kann theoretisch ein beliebig großer Anteil der Aufrufe und Zeit über die geforderte Genauigkeit hinausgehen und das Ergebnis des Optimierungsprogramms im Vergleich schlechter erscheinen lassen.

Für die erhaltenen guten Lösungen wurde daher der Anteil  $\chi_{\text{gut,unnötig}}$  an unnötigen Simulationsaufrufen ermittelt. Dieser umfasst alle Aufrufe, die von einem Optimierungsprogramm nach Erreichen der geforderten 99.9% des besten Zielfunktionswerts durchgeführt werden. Die zugehörigen Werte sind in Tabelle 7.5 dargestellt. Der Anteil  $\chi_{\text{gut,unnötig}}$  schwankt in einem Wertebereich von 0.33–0.84. Die Zahl der tatsächlichen Simulationsaufrufe ist demnach in etwa das 1.5–6-fache der Mindestzahl zum Erreichen einer guten Lösung, was sich entsprechend auf die nötige Zeit  $\bar{t}$  auswirkt. Es ergeben sich für gute Lösungen relative Unterschiede zwischen den Optimierungsprogrammen, die sich innerhalb des Faktors 4 und damit unterhalb einer Größenordnung bewegen.

Grundsätzlich wäre es wünschenswert, diesen Effekt rechnerisch mithilfe der im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung zu berücksichtigen. Allerdings ist der Anteil  $\chi_{\text{gut,unnötig}}$  an unnötigen Simulationsaufrufen per Definition nur für den Anteil der guten Lösungen gültig und kann nicht pauschal mit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  verrechnet werden, da diese Größe auch den Zeitbedarf für die übrigen Lösungen betrachtet.

Qualitativ zeigt der Anteil  $\chi_{\text{gut,unnötig}}$  an unnötigen Simulationsaufrufen allerdings, dass insbesondere die Optimierungsprogramme IPOPT und CMA-ES tendenziell von etwas größeren Toleranzen der Abbruchkriterien profitieren könnten. Dadurch würde die im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung von IPOPT gegenüber fmincon abnehmen, CMA-ES würde allerdings noch immer eine Größenordnung darüber liegen.

Die Toleranzen der Abbruchkriterien besitzen demnach wie erwartet einen Einfluss auf die im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung. Da sich die relativen Auswirkungen

für sämtliche Optimierungsprogramme unterhalb einer Größenordnung bewegen, fallen diese für einen praxisrelevanten Vergleich ausreichend gering aus.

**Art des Differenzenquotienten** Für die gradientenbasierten Optimierungsprogramme werden die Gradienten über Differenzenquotienten bereitgestellt. Die Art des Differenzenquotienten (siehe Abschnitt 4.3) ist dabei ein sekundärer Effekt, der das Ergebnis der Optimierungsprogramme beeinflusst. Insbesondere in DS3 zeigt sich bei der Verwendung von zentralen Differenzenquotienten ein deutlicher Vorteil bezüglich  $\bar{t}_{\text{gut}}$ . Um derartige Unterschiede mit vorwärtsgerichteten (v) und zentralen (z) Differenzenquotienten für fmincon und IPOPT herauszuarbeiten, werden hier bereits von Anfang an beide Varianten zur Prozessoptimierung angewandt. Für die finale Empfehlung der Optimierungsprogramme liegen damit die Ergebnisse für beide Varianten separat vor. Der Vergleich beider Ansätze kann damit in diesem Zusammenhang erfolgen und muss nicht wie die übrigen sekundären Effekte bereits hier quantifiziert werden.

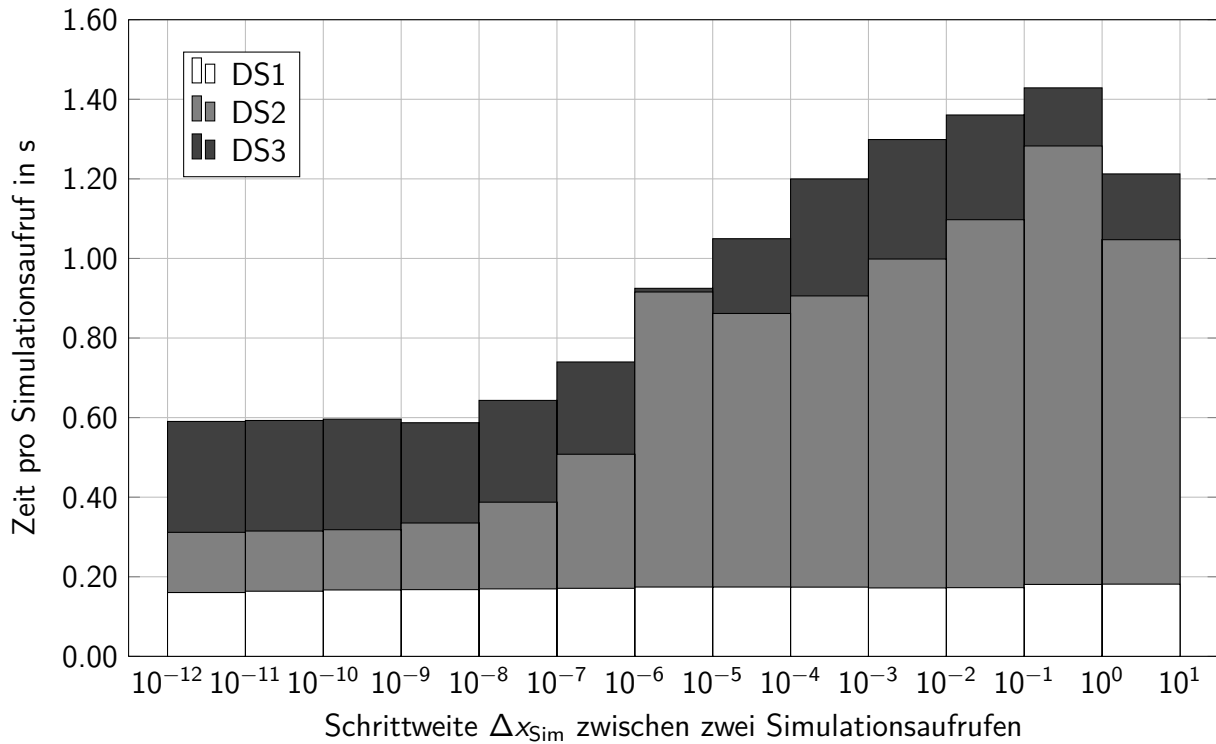
Generell lässt sich festhalten, dass die Effizienz der gradientenbasierten Optimierungsprogramme stark von der Güte der bereitgestellten Gradienten abhängt. Die Tatsache, dass diese Optimierungsprogramme bezüglich  $\bar{t}_{\text{gut}}$  am besten abschneiden, deutet hier auf eine ausreichend hohe Güte hin, auch wenn noch eine weitere Verbesserung z. B. über die Anpassung der verwendeten Schrittweite  $h$  möglich sein sollte.

**Eigenschaften der Optimierungsprobleme** Auch das Optimierungsproblem an sich kann aufgrund seiner Besonderheiten Einfluss auf die Effizienz der Optimierungsprogramme nehmen. Um möglichst allgemeingültige Aussagen über die Optimierungsprogramme ableiten zu können, werden im Folgenden charakteristische Eigenschaften der hier betrachteten Optimierungsprobleme herausgearbeitet und deren Einfluss auf die Größe  $\bar{t}_{\text{gut}}$  quantifiziert. Neben der mittleren Zeit pro Simulationsaufruf als Funktion der Schrittweite  $\Delta x_{\text{sim}}$  zwischen zwei Simulationsaufrufen, werden hierbei auch fehlerhafte Simulationsaufrufe ohne gültige Lösung des Fließbilds näher betrachtet.

Die Verteilung der Schrittweite  $\Delta x_{\text{sim}}$  zwischen zwei Simulationsaufrufen ist ein grundlegender Unterschied zwischen den Optimierungsprogrammen. Diese ist nach Gleichung (4.22) definiert. Ein Einfluss auf  $\bar{t}_{\text{gut}}$  ergibt sich dann, wenn unterschiedliche Schrittweiten auch deutlich unterschiedliche Berechnungszeiten zur Folge haben. Dies ist eine Eigenschaft der Optimierungsprobleme selbst, die daher losgelöst von dem Optimierungsprogrammen untersucht werden kann.

Die mittlere Zeit pro Simulationsaufruf aller durchgeführten Simulationsschritte ist für DS1 bis DS3 in Abbildung 7.7 über der zugehörigen Schrittweite  $\Delta x_{\text{sim}}$  aufgetragen. Wie zu erwarten steigt die erforderliche Zeit pro Simulationsaufruf tendenziell mit der Schrittweite  $\Delta x_{\text{sim}}$  an. Für größere Schrittweiten  $\Delta x_{\text{sim}}$  werden dabei aufgrund des größeren Abstands von dem aktuellen Zustand der Simulation zusätzliche Iterationen und eine längere Rechenzeit benötigt.

Qualitativ nähert sich die Zeit für einen Simulationsaufruf für kleinere Schrittweiten  $\Delta x_{\text{sim}}$  asymptotisch einem minimalen Wert an, der mit steigender Komplexität



**Abbildung 7.7:** Mittlere Zeit pro Simulationsaufruf in Abhängigkeit von dem Schrittweite zwischen zwei Simulationsaufrufen für die Detaillierungsstufen DS1 bis DS3; Mittelung für logarithmisch skalierte Schrittweitenbereiche, der untere Rand eines Bereichs wird jeweils diesem selbst zugeordnet

der Simulation von DS1 nach DS3 kontinuierlich größer ausfällt. Diese Zeit ist die Summe aus dem Zeitbedarf der Schnittstelle für das Setzen und Lesen der neuen Werte und dem Zeitbedarf der Prozesssimulation. Selbst für sehr kleine, praktisch nicht relevante Schrittweiten  $\Delta x_{\text{Sim}}$  bzw. Änderungen in den Optimierungsvariablen wird in der Prozesssimulation geprüft, ob für einzelne Grundoperationen oder RECYCLE-Operationen entsprechend der Toleranzen eine Neuberechnung erforderlich ist. Der Berechnungsaufwand für diese Prüfung ist von der Komplexität des Fließbilds abhängig und steigt daher von DS1 nach DS3 an.

Zum Vergleich wird die reine Zugriffszeit der Schnittstelle mit einer Schrittweite  $\Delta x_{\text{Sim}} = 0$ , d. h. dem mehrfachen Setzen des exakt gleichen Satzes an Optimierungsvariablen ermittelt. Hierfür wurde der unter 6.2.2 beschriebene Zwischenspeicher deaktiviert, um die Werte tatsächlich für jeden Aufruf an die Prozesssimulation weiterzugeben. Es ergibt sich dabei für DS1 bis DS3 ein nicht signifikanter, konstanter Zeitbedarf von 0.02s, der durch die vektorbasierte Übergabe der Werte auch unabhängig von der Zahl der Optimierungsvariablen und Nebenbedingungen ist. Der Prozesssimulator führt demzufolge bei der wiederholten Vorgabe von numerisch identischen Eingabewerten keine unnötige Prüfung der Toleranzen für die bestehende Lösung des Fließbilds durch.

Der relative Unterschied zwischen den Schrittweiten fällt für DS1 am geringsten aus. Für diesen Prozess ohne Rückführungen ist keine iterative Lösung auf Fließbildebene erforderlich, lediglich die einzelnen Blöcke in der Sequenz müssen jeweils einmal



gelöst werden. Größere Schrittweiten  $\Delta x_{\text{sim}}$  erfordern damit keine Iterationen auf Fließbildebene. Zudem benötigt der vergleichsweise einfache Prozess an sich nur eine geringe Rechenzeit. Diese fällt gegenüber dem nahezu konstanten Zeitbedarf für die Prüfung der Toleranzen gering aus. Insgesamt ergibt sich damit in DS1 für die Zeit pro Simulationsaufruf keine signifikante Abhängigkeit von der zugehörigen Schrittweite.

Für DS2 ergibt sich für kleine Schrittweiten ebenfalls eine näherungsweise konstante mittlere Zeit pro Simulationsaufruf mit geringer Standardabweichung. Die Zeit für einen Simulationsaufruf fällt für DS2 absolut höher aus als für DS1. Ab einer praktisch relevanten Schrittweite von  $10^{-6}$  sind immer mehr zusätzliche Iterationen auf Fließbildebene zur Lösung der Rückführung in der Synthese notwendig, und die Zeit pro Simulationsaufruf steigt tendenziell an.

DS3 zeigt einen ähnlichen qualitativen Verlauf wie DS2. Die im Mittel höhere absolute Zeit für einen Simulationsaufruf ist auf zusätzliche Grundoperationen und damit zusätzliche Berechnungsschritte im Fließbild zurückzuführen. Insbesondere die Berechnung der Kolonnen und des Dampfsystems sorgen dabei für einen Anstieg der Zeit für einen Simulationsaufruf.

Insgesamt lässt sich für DS2 und DS3 erkennen, dass die Schrittweite  $\Delta x_{\text{sim}}$  zwischen zwei Simulationsaufrufen erst ab einem praktisch relevanten Wert von  $10^{-6}$  einen Einfluss auf die mittlere Zeit pro Simulationsaufruf besitzt. Selbst in diesem Bereich fallen die Unterschiede zwischen den Schrittweiten allerdings gering aus; die Zeit pro Simulationsaufruf weicht hier lediglich um maximal  $\approx 50\%$  vom zugehörigen Mittelwert des Bereichs ab. Der beobachtete Einfluss steigt dabei mit der Komplexität des betrachteten Optimierungsproblems an, fällt jedoch insgesamt gering aus.

Ein weiteres Indiz für die geringe Größe dieses sekundären Einflusses und dessen Auswirkung auf die Beurteilung der Optimierungsprogramme gibt Tabelle 7.4. Hier korreliert der mittlere Zeitbedarf  $\bar{t}$  gut mit der mittleren Zahl der Simulationsaufrufe  $\bar{n}_{\text{sim}}$ , die daraus abgeleitete benötigte Zeit pro Simulationsaufruf ist in Tabelle 7.5 dargestellt. Während benötigte Zeit pro Simulationsaufruf für DS1 bis DS3 im Mittel deutlich ansteigt, fallen die relativen Unterschiede zwischen den Optimierungsprogrammen innerhalb einer Detaillierungsstufe geringer aus. Für DS1 sind wie nach Abbildung 7.7 zu erwarten keine signifikanten Unterschiede zwischen den Optimierungsprogrammen zu erkennen. Die größten Werte und damit ein geringfügiger Nachteil durch diesen sekundären Effekt ergeben sich in DS2 und DS3 für die ableitungsfreien Optimierungsprogramme COBYLA, CMA-ES und GA. Die quantitativen Unterschiede zwischen den Optimierungsprogrammen bewegen sich dabei in dem zuvor aus Abbildung 7.7 abgeleiteten Bereich.

Die gradientenbasierten Optimierungsprogramme profitieren hierbei geringfügig von der vordefinierten Schrittweite  $h = 10^{-2}$  für zentrale bzw.  $h = 10^{-3}$  für vorwärtsgerichtete Differenzenquotienten, die während der Optimierung den Großteil der zugehörigen Simulationsaufrufe ausmachen. Gleichzeitig werden für diese Aufrufe nur einzelne Optimierungsvariablen ausgelenkt, was tendenziell zu weniger Berechnungsschritten und einer geringeren Zeit für den Simulationsaufruf führt. Lediglich die wenigen aus

den Gradienten abgeleiteten Iterationsschritte fallen für diese Optimierungsprogramme größer aus.

Die ableitungsfreien Optimierungsprogramme zeigen in Tabelle 7.5 einen hohem Zeitbedarf pro Simulationsaufruf. Dieser liegt im oberen Bereich in Abbildung 7.7 gezeigten Werte. Ein signifikanter Teil der Simulationsaufrufe wird daher mit Schrittweiten  $\Delta x_{\text{Sim}} > 10^{-2}$  durchgeführt. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die ableitungsfreien Optimierungsprogramme üblicherweise insbesondere zu Beginn der Optimierung Aufrufe mit größerer Schrittweite aufweisen, die erst mit zunehmender Zahl der Iterationen bis hin zur Konvergenz verkleinert wird.

Die durch das Optimierungsproblem bestimmte Schrittweite  $\Delta x_{\text{Sim}}$  zwischen zwei Simulationsaufrufen beeinflusst die im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung insgesamt deutlich unterhalb einer Größenordnung. Die Größe kann daher auch trotz dieses sekundären Effekts sinnvoll zur Beurteilung der Optimierungsprogramme verwendet werden.

Ein weiterer, durch das Optimierungsproblem bestimmter sekundärer Effekt, sind die Simulationsaufrufe ohne gültige Lösung des Fließbilds. Dieser ergibt sich aufgrund des speziellen hier betrachteten Ansatzes zur Prozessoptimierung. Durch die Schnittstelle wird für fehlerhafte Simulationsaufrufe nach Abschnitt 6.2.3 gegebenenfalls ein Ersatzwert für Zielfunktion und/oder Nebenbedingungen zurückgeben. In Tabelle 7.4 sind die zugehörigen Anteile  $\chi_{\text{Fehler}}$  und  $\varphi_{\text{Fehler}}$  der fehlerhaften Simulationen bzw. Lösungen aufgeführt. Generell fallen beide Werte für sämtliche Detaillierungsstufen gering aus. Als Ausnahme zeigt COBYLA hier meist vergleichsweise hohe Werte, insbesondere für DS2 ist es das einzige Optimierungsprogramm mit signifikanten Anteilen  $\chi_{\text{Fehler}}$  und  $\varphi_{\text{Fehler}}$ . Auch IPOPT(v) mit vorwärtsgerichteten Differenzenquotienten zeigt in DS1 und DS3 insbesondere im direkten Vergleich mit IPOPT(z) mit zentralen Differenzenquotienten deutlich erhöhte Werte für beide Größen. Daneben weisen sowohl fmincon(v) als auch fmincon(z) in DS3 ebenfalls größere Probleme auf. Hier zeigt sich allerdings, wie für IPOPT, dass für zentrale Differenzenquotienten deutlich geringere Anteile fehlerhafter Simulationen und Lösungen erhalten werden.

Generell ist aufgrund der niedrigen Werte für die Anteile  $\chi_{\text{Fehler}}$  und  $\varphi_{\text{Fehler}}$  auch der Einfluss auf erhaltenen Ergebnisse zur Beurteilung der Optimierungsprogramme als gering einzuschätzen. Durch die Rückgabe von konstanten Ersatzwerten im Fall von Fehlern wäre eigentlich zu erwarten, dass gerade gradientenbasierte Optimierungsprogramme in diesem Fall keine Information durch den Gradienten erhalten und größere Schwierigkeiten aufweisen. Für fmincon und IPOPT sorgt allerdings die nach Abschnitt 4.2.1 genäherte und nur schrittweise angepasste Hesse-Matrix dauerhaft für eine bleibende Triebkraft. Zudem zeigt sich in der praktischen Anwendung, dass für den Fall von einzelnen konstanten Werten für Zielfunktion oder Nebenbedingungen die übrigen Rückgabewerte durch die Iterationen trotzdem weiter verbessert werden. Das Optimierungsprogramm kehrt durch die damit verbundene Veränderung der Optimierungsvariablen mit großer Wahrscheinlichkeit wieder in den Bereich gültiger Simulationen zurück.

Die Quantifizierung und Diskussion sämtlicher hier betrachteten sekundären Effekte zeigt insgesamt nur einen geringen Einfluss auf die im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung, der sich deutlich unterhalb einer Größenordnung bewegt. Den größten Einfluss besitzen die Toleranzen der Abbruchkriterien. Dabei würden insbesondere die Optimierungsprogramme IPOPT und CMA-ES tendenziell von etwas größeren Toleranzen der Abbruchkriterien profitieren.

Für einen praxisrelevanten Vergleich ist die im Mittel erwartete Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung ausreichend aussagekräftig. Im Folgenden werden die numerischen Ergebnisse für die betrachteten Optimierungsprogramme abschließend beurteilt und Empfehlungen für den hier verwendeten Ansatz zur Prozessoptimierung abgeleitet.

### 7.2.3 Abschließende Beurteilung und Empfehlung

Die numerischen Ergebnisse der vorangehenden Abschnitte sind in Tabelle 7.6 zusammengestellt. Die Effizienz wird dabei anhand der im Mittel erwarteten Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung ermittelt und abhängig von den Detaillierungsstufen DS1 bis DS3 gezeigt. Zudem wird die Unabhängigkeit von dem verwendeten Startpunkt berücksichtigt sowie die Anwendbarkeit in der Praxis beurteilt.

**Tabelle 7.6:** Zusammenfassung der numerischen Ergebnisse für die verwendeten Optimierungsprogramme; die Effizienz wird anhand der im Mittel erwarteten Zeit  $\bar{t}_{\text{gut}}$  für eine gute Lösung beurteilt und abhängig von der steigenden Komplexität bzw. den Detaillierungsstufen DS1 bis DS3 dargestellt

Optimierungsprogramm	Effizienz ( $\bar{t}_{\text{gut}}$ )			Unabhängigkeit v. Startpunkt	Einfache Anwendung
	DS1	DS2	DS3		
fmincon(v)	+	++	+	-	-
fmincon(z)	++	+	++	o	-
IPOPT(v)	+	+	o	o	-
IPOPT(z)	+	+	++	+	-
COBYLA	o	o	o	--	++
CMA-ES	--	--	-	++	++
GA	(--)	(--)	(--)	(--)	(o)

Für die gradientenbasierten Optimierungsprogramme fmincon und IPOPT zeigt sich zunächst eine überwiegende Verbesserung der Ergebnisse durch die Verwendung von zentralen (z) Differenzenquotienten, die für das Optimierungsprogramm IPOPT am größten ausfällt. Für den hier verwendeten Ansatz zur Prozessoptimierung ergeben sich, wie in Abschnitt 4.3.2 beschrieben, besondere Herausforderungen bezüglich der Genauigkeit der Gradienten. Daher überwiegt hier meist der Vorteil der größeren Genauigkeit der zentralen Differenzenquotienten, durch die letztendlich die Gesamtzahl der Iterationen geringer ausfällt. Der Nachteil der zusätzlichen Simulationsaufrufe

in jeder Iteration wird damit meist mehr als ausgeglichen. Generell wird daher die Verwendung von zentralen Differenzenquotienten empfohlen.

Im direkten Vergleich zeigt `fmincon(z)` gegenüber `IPOPT(z)` Vorteile für weniger komplexe Optimierungsaufgaben wie in DS1. `IPOPT(z)` schließt allerdings mit steigender Komplexität bzw. Detaillierungsstufe bis DS3 nahezu vollständig zu `fmincon` auf. Dieses Ergebnis passt zu der Arbeit von BIEGLER 2014, in der mit steigender Komplexität des Optimierungsproblems ein Vorteil von Innere-Punkte Ansätzen wie in `IPOPT` gegenüber SQP-basierten Ansätzen wie in `fmincon` beschrieben wird. `IPOPT(z)` zeigt hier zudem Vorteile bei der Unabhängigkeit vom Startpunkt und damit der Zuverlässigkeit, mit der eine gute Lösung gefunden wird. Von den gradientenbasierten Optimierungsprogrammen wird daher `IPOPT` in Verbindung mit zentralen Differenzenquotienten (`IPOPT(z)`) empfohlen.

Für die ableitungsfreien Optimierungsprogrammen `COBYLA`, `CMA-ES` und `GA` konnte mit `GA` in keinem der betrachteten Fälle eine gute Lösung erreicht werden; lediglich gültige Lösungen unter Einhaltung der Nebenbedingungen wurden mit sehr hohem Zeitbedarf erhalten. Die zugehörigen Ergebnisse sind in Tabelle 7.6 entsprechend in Klammern dargestellt. `GA` wird daher als das am wenigsten geeignete Optimierungsprogramm für die hier betrachtete Prozessoptimierung angesehen. Von den verbleibenden beiden Optimierungsprogrammen weist `COBYLA` eine höhere Effizienz und damit einen geringeren Zeitbedarf für das Auffinden einer guten Lösung auf. Allerdings sind dabei für das Erreichen einer guten Lösung aufgrund der starken Abhängigkeit vom Startpunkt oft mehrere Aufrufe nötig, für einige Startpunkte kann trotz dieser Maßnahmen keine gute Lösung gefunden werden. `CMA-ES` zeigt gegenüber `COBYLA` durchgehend eine vergleichsweise geringe Effizienz, findet jedoch mithilfe eines populationsbasierten Ansatzes mit sehr großer Wahrscheinlichkeit von einem beliebigen Startpunkt aus in einem Aufruf zu einer guten Lösung. Aufgrund dieser Zuverlässigkeit wird von den ableitungsfreien Optimierungsprogrammen `CMA-ES` für die praktische Anwendung empfohlen.

Die generelle Entscheidung, ob ein gradientenbasiertes (`IPOPT(z)`) oder ableitungsfreies (`CMA-ES`) Optimierungsprogramm zum Einsatz kommt, ist dagegen oftmals durch praktische Rahmenbedingungen bestimmt. Die beiden Ansätze unterscheiden sich hier zum Einen durch die Effizienz bei der eigentlichen Prozessoptimierung, d. h. die Zeit die im Mittel für das Auffinden einer guten Lösung benötigt wird. Hier zeigen die gradientenbasierten Optimierungsprogramme deutliche Vorteile. Diese zeitlichen Vorteile werden auch von WAHL et al. 2013 für eine konkrete Prozessoptimierung im Bereich Erdgasverflüssigung beschrieben; der Vergleich erfolgt dabei mit dem ableitungsfreien Ansatz von ASPELUND et al. 2010. Dagegen ist die einfache Anwendung der Optimierungsprogramme ebenfalls ein praxisrelevantes Kriterium, bei dem ableitungsfreie Optimierungsprogramme deutliche Vorteile besitzen. Die Wahl hängt demnach von der vom Nutzer gewünschten Effizienz und der bevorzugten Arbeitsweise ab. Hierfür werden nachfolgend zwei grundlegende Varianten unterschieden.

**Variante 1:** Für eine möglichst schnelle eigentliche Prozessoptimierung wird das Optimierungsprogramm IPOPT(z) empfohlen, das verglichen mit den ableitungsfreien Optimierungsprogrammen von dem zusätzlichen Informationsgehalt der Gradienten profitiert. In der Regel sind für die Anwendung allerdings vom Nutzer zusätzliche, zeitaufwendige Vorarbeiten durchzuführen. So ist unter Umständen eine Implementierung für die numerische Näherung der Gradienten nötig, für die Abschätzung der zugehörigen Schrittweite  $h$  nach den Gleichungen (4.28) bzw. (4.29) ist für einen guten Schätzwert zumindest die Ermittlung des relativen Fehlers  $\varepsilon_{\text{rel}}$  der Simulation (siehe Abschnitt 6.1) erforderlich.

**Variante 2:** Für eine möglichst zuverlässige Prozessoptimierung ohne zusätzliche Vorarbeiten wird CMA-ES empfohlen. Der größere Zeitbedarf für die eigentliche Prozessoptimierung erfordert im Gegenzug keine aktive Mehrarbeit durch den Nutzer. Auf weitere Implementierungen, Vorstudien oder eine große Zahl an Startpunkten und Wiederholungen kann hier verzichtet werden. CMA-ES wird daher generell für hybride Ansätze zur Prozessoptimierung empfohlen. Neben dem einfachen Einstieg, insbesondere zu Beginn der Arbeiten, lassen sich mit CMA-ES auch unkompliziert Referenzlösungen für den Vergleich mit anderen Optimierungsprogrammen ermitteln.

Für allgemeine Optimierungsprobleme sieht CONN et al. 2009 zusätzliche Arbeiten wie in Variante 1 für die Anwendung von gradientenbasierten Optimierungsprogrammen als lohnenswert an, wenn die zugrundeliegenden Funktionen stetig sind und keine bzw. kaum statistischen Fehler aufweisen. Dies ist Voraussetzung für die numerische Näherung der Gradienten mit Differenzenquotienten [NOCEDAL & WRIGHT 2006]. Laut CONN et al. 2009 sollten in diesem Fall gradientenbasierte Verfahren, wie hier IPOPT(z), zum Einsatz kommen. Im Bereich der Prozessoptimierung, insbesondere in der praktischen Anwendung, ist jedoch oftmals der Zeitaufwand für die Modellierung und Implementierung der Prozesse bereits um ein Vielfaches höher als die von den Optimierungsprogrammen benötigte Zeit. Demnach ist zumindest für den hier betrachteten Ansatz zur Prozessoptimierung fraglich, ob in der Praxis mit Variante 1 weitere Arbeitszeit für eine Beschleunigung der Optimierung investiert werden sollte, wenn über Variante 2 durch eine erhöhte Rechenzeit mittels ableitungsfreier Optimierungsprogramme bereits zuverlässig eine gute Lösung gefunden werden kann.



# 8 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein hybrider Ansatz zur Prozessoptimierung am Beispiel der industriellen Methanolsynthese verwendet. Die Modellierung des Prozesses erfolgte dabei in drei aufeinander aufbauenden Detaillierungsstufen mit steigender Komplexität. Die gute Dokumentation des zugehörigen Stands der Technik in der Literatur stellt sicher, dass dabei technisch sinnvolle Annahmen und Nebenbedingungen gewählt werden.

Durch den gewählten hybriden Ansatz konnte die Implementierung in dem sequentiell-modularen Prozesssimulator UniSim<sup>®</sup> Design V430 von Honeywell erfolgen, die vorhandenen Bibliotheken für Grundoperationen und Stoffdatenmodelle konnten so direkt genutzt werden. Das jeweilige Optimierungsproblem wurde durch eine speziell gewählte Struktur ebenfalls im Prozesssimulator definiert. Die Prozessoptimierung erfolgte auf diese Weise flexibel mit verschiedenen gradientenbasierten und ableitungsfreien Optimierungsprogrammen. Diese sind zum Teil direkt in MATLAB verfügbar, alternativ werden diese dort über externe Bibliotheken zur Verfügung gestellt. Für die Kopplung der Optimierungsprogramme mit dem Prozesssimulator wurde eine geeignete objektorientierte Schnittstelle in MATLAB implementiert, die auch in weiteren Arbeiten erfolgreich angewendet wurde [SUNDBERG et al. 2017, CARDELLA et al. 2017, SUNDBERG et al. 2018].

Durch den gewählten Ansatz ergeben sich für die Prozessoptimierung einige Besonderheiten und zugehörige allgemeine Erkenntnisse. So stellt der Prozess für das Optimierungsprogramm ein Black-Box Problem dar. Für gradientenbasierte Optimierungsprogramme ist damit in der Schnittstelle eine numerische Näherung der Gradienten mittels Differenzenquotienten erforderlich. Die zugehörige Schrittweite ist entscheidend für die erreichte Genauigkeit und wurde mit einer Abschätzung nach GILL et al. 1983 und NOCEDAL & WRIGHT 2006 basierend auf dem numerischen Fehler der Simulation ermittelt. Die damit erreichten guten Ergebnisse in der Prozessoptimierung bestätigen die Eignung des Ansatzes für die praktische Anwendung. Daneben beinhaltet die Schnittstelle eine Fehlerbehandlung für den seltenen Fall, dass für einen Satz von Optimierungsvariablen keine Lösung im Prozesssimulator gefunden werden kann. Um mehrfache Aufrufe der gleichen Prozesssimulationen zu vermeiden, wurde zudem ein entsprechender Zwischenspeicher bereits ermittelter Lösungen implementiert. Durch das einfache Minimieren des Fensters des Prozesssimulators während der Prozessoptimierung wurde die benötigte Zeit für eine Simulation signifikant reduziert. Wesentliche Vorteile für die Prozessoptimierung wurden des Weiteren durch deutlich reduzierte Lösungstoleranzen des Prozesssimulators und eine Skalierung der Zielfunktion, Optimierungsvariablen und Nebenbedingungen auf ähnliche Größenordnungen erreicht.

Für die Prozessoptimierung der industriellen Methanolsynthese ergeben sich in den drei Detaillierungsstufen nichtlineare Optimierungsprobleme mit jeweils 10, 13 bzw. 19 Optimierungsvariablen und 3, 4 bzw. 12 Nebenbedingungen. Die zugehörige Zielfunktion

ist für alle Optimierungsprobleme identisch und basiert auf der thermodynamisch motivierten Kaltgaseffizienz des Prozesses. Aufgrund der technischen Relevanz werden im Folgenden lediglich für den vollständig integrierten Gesamtprozess in Detaillierungsstufe 3 die wichtigsten Ergebnisse der Optimierungsvariablen zusammengefasst.

In der optimalen Prozesskonfiguration wird das vorgewärmte Erdgas vollständig dem Prereformer zugeführt und dort teilweise zu Synthesegas umgesetzt. Hierfür wird an dieser Stelle der gesamte im Prozess genutzte Prozessdampf zugegeben. Die nachfolgende Vorwärmung vor dem eigentlichen Dampfreformer erfolgt bis an die obere Grenze. So kann Wärme auf niedrigerem Temperaturniveau für die Reaktion bzw. Vorwärmung genutzt werden. Für den Dampfreformer selbst finden sich Werte für die Optimierungsvariablen, die zwischen den jeweiligen unteren und oberen Grenzen liegen. Derartige Werte sind von besonderer Bedeutung, da sie meist eine Art Kompromiss zwischen verschiedenen Effekten darstellen oder zur Einhaltung einer oder mehrerer Nebenbedingungen erforderlich sind. Dies gilt hier für die Austrittstemperatur des Dampfreformers sowie das Verhältnis von zugeführtem Prozessdampf zu Kohlenstoff aus Erdgas in der Gesamtbilanz. Diese stellen zusammen über die Gleichgewichtsreaktionen einen thermodynamisch optimalen Umsatz der Synthesegaserzeugung ein.

Das extern verfügbare  $\text{CO}_2$  wird dem Synthesegas vollständig erst vor der Synthese zugegeben. Durch die Zugabe einer geringfügig überstöchiometrischen Menge an  $\text{CO}_2$  wird der spätere selektive Austrag in der Synthese bereits im Vorfeld ausgeglichen. Aufgrund der Exothermie der dortigen Reaktion zu Methanol wird die Synthesetemperatur an der unteren Grenze gewählt. Trotz des zusätzlichen Energiebedarfs für die Kompression wird für den zugehörigen Synthesedruck und das Recycle-Verhältnis jeweils die obere Grenze gewählt, um den Umsatz zu Methanol zu maximieren.

Besonderem Bedeutung kommt dem Dampfsystem zu, mit dessen Hilfe die Wärmeintegration des Prozesses umgesetzt wird. Eine wesentliche Einflussgröße stellt dabei der Druck des Dampfs auf Hochdruck-Niveau dar. Über die zugehörige Verdampfungsenthalpie wird dadurch indirekt der erzeugte Massenstrom an Dampf variiert. Der Druck wird dabei soweit erhöht, dass der Gesamtbedarf an mechanischer Leistung über die Dampfturbine exakt gedeckt wird. Die nötige Überhitzung des Dampfs mittels Rauchgas wird geeignet zwischen den gegebenen Grenzen gewählt, um den minimalen Dampfanteil am Austritt der Turbine gerade noch einzuhalten.

Für die Feuerung wird zusätzlich zu den vorhandenen Purgeströmen des Prozesses ein gewisser Anteil des zugeführten Erdgases als Fuel verwendet. Dieser Anteil wird so gewählt, dass die geforderte minimale Rauchgasendtemperatur nicht unterschritten wird und so die Kondensation von korrosiven Bestandteilen verhindert werden kann. Die zugehörige Luftvorwärmung mittels Rauchgas wird bis an die obere Grenze erhöht, um das Rauchgas auf einem höherem Temperaturniveau nutzen zu können.

Die damit für den vollständig integrierten Gesamtprozess erhaltene Kaltgaseffizienz erscheint im Vergleich mit Literaturwerten hoch. Allerdings wurde hier zur Untersuchung der Methodik zur Prozessoptimierung auf die Abbildung von Verunreinigungen, Nebenprodukten und Wärmeverlusten, insbesondere bei der Feuerung des Dampfreformers,



verzichtet. Diese würden die Kaltgaseffizienz des betrachteten Prozesses und damit auch den beobachteten Unterschied reduzieren. Der hier im Rahmen der erhaltene Wert kann daher eher als eine Art thermodynamisches Maximum für den betrachteten Prozess gesehen werden.

Für die Prozessoptimierung wurden als gradientenbasierte Optimierungsprogramme `fmincon` und `IPOPT` verwendet. Dabei wurde jeweils eine Konfiguration mit vorwärtsgerichteten und eine Konfiguration mit zentralen Differenzenquotienten zur numerischen Näherung der Gradienten betrachtet. Daneben wurden die ableitungsfreien Optimierungsprogramme `COBYLA`, `CMA-ES` und `GA` eingesetzt.

Für jede der drei Detaillierungsstufen wurden jeweils 5 Startpunkte mit linear ansteigenden Werten und 5 Startpunkte mittels Latin Hypercube Sampling für die Prozessoptimierung festgelegt. Für jeden dieser 10 Startpunkte wurden wiederum 5 Wiederholungen der Optimierungsläufe durchgeführt. Die einzige Ausnahme bildet dabei `GA`. Aufgrund der fehlenden Möglichkeit zur Vorgabe eines Startpunkts wurden hier lediglich 5 Wiederholungen ausgeführt. Insgesamt wurden im Rahmen der Arbeit 915 Optimierungsläufe durchgeführt, die einen direkten Vergleich der Optimierungsprogramme erlauben.

Bis auf wenige Ausnahmen erreichten sämtliche Optimierungsprogramme für alle Detaillierungsstufen zumindest eine Lösung nahe der besten gefundenen. Lediglich mit dem ableitungsfreien Optimierungsprogramm `GA` konnte für keines der Optimierungsprobleme eine gute Lösung gefunden werden. Nur die Ermittlung von gültigen Lösungen, d. h. mit Einhaltung der Nebenbedingungen, war hier möglich.

Für die Abhängigkeit vom Startpunkt lassen sich lediglich spezifische Probleme für einzelne Optimierungsprogramme feststellen, von fast allen Startpunkten aus konnte meist mit mehreren und ansonsten zumindest mit einem der Optimierungsprogramme zuverlässig eine gute Lösung gefunden werden.

Die geringste Zeit für einen Optimierungslauf wird im Mittel von den gradientenbasierten Optimierungsprogrammen erreicht, dabei liegt `fmincon` vor `IPOPT`. Die zusätzliche Information durch die Gradienten erweist sich trotz des damit verbundenen Berechnungsaufwands als vorteilhaft.

Die Zuverlässigkeit wird über den Anteil der guten Lösungen, die mindestens 99.9 % des besten Zielfunktionswerts der jeweiligen Detaillierungsstufe aufweisen, beurteilt. Sehr gute Ergebnisse werden hier im Mittel von dem ableitungsfreien Optimierungsprogramm `CMA-ES` erreicht.

Die Effizienz der Optimierungsprogramme wird abschließend anhand der im Mittel erwartete Zeit für eine gute Lösung evaluiert, die sich aus dem Verhältnis der beiden zuvor beschriebenen Beurteilungskriterien ergibt. Die beste Effizienz erreicht hier `fmincon` gefolgt von `IPOPT`. Für beide Optimierungsprogramme zeigt die Verwendung zentraler Differenzenquotienten zur numerischen Näherung der Gradienten Vorteile. `IPOPT` schließt dabei bezüglich der Effizienz für Optimierungsprobleme mit zunehmender

Komplexität nahezu vollständig zu `fmincon` auf und weist hierbei eine deutlich größere Zuverlässigkeit auf.

Für eine möglichst effiziente Prozessoptimierung für komplexere Optimierungsprobleme wird IPOPT in Verbindung mit zentralen Differenzenquotienten empfohlen. Die Verwendung ist allerdings mit zusätzlichen Vorarbeiten zur Bereitstellung der Gradienten verbunden. Spielt die benötigte Zeit für die eigentliche Prozessoptimierung nur einen untergeordnete Rolle, kann das ableitungsfreie Optimierungsprogramm CMA-ES ohne zusätzliche Vorarbeiten direkt als zuverlässige Alternative verwendet werden.

Zukünftige Arbeiten könnten neben weiteren Optimierungsprogrammen die Verwendung von adaptiven Schrittweiten zur numerischen Näherung der Gradienten umfassen. Durch die dafür nötigen zusätzlichen Informationen bzw. Simulationsaufrufe ist zu erwarten, dass nur ein geringes Potenzial zur Beschleunigung der Prozessoptimierung vorhanden ist. Allerdings könnten auf diese Weise automatisiert passende Schrittweiten gefunden werden, wenn mit der hier verwendeten Methodik zur Abschätzung einer einheitlichen Schrittweite nicht die gewünschten Ergebnisse erzielt werden. Der hierfür von GILL et al. 1983 entwickelte Algorithmus zur Abschätzung einer optimalen Schrittweite wurde dafür bereits in die Schnittstelle implementiert.

Ein weiteres interessantes Gebiet ist die Optimierung der Einstellungen von Optimierungsprogrammen mittels einem weiteren, übergeordneten ableitungsfreien Optimierungsprogramm CONN et al. 2009. Für hybride Ansätze könnten derartige Methoden auch für die Skalierung der Optimierungsprobleme und die Wahl der Schrittweite für die numerische Näherung der Gradienten zum Einsatz kommen, die ansonsten meist als zeitaufwendige Vorarbeit durch den Nutzer selbst ermittelt werden. Daneben könnten die Möglichkeiten der Parallelisierung für hybride Ansätze zur Prozessoptimierung evaluiert werden. Für den hier verwendeten Prozesssimulator kann nur ein Prozessorkern gleichzeitig genutzt werden. Durch Aufruf von mehreren Instanzen des Prozesssimulators durch die Schnittstelle könnte die Simulation jedoch parallel und auf mehr als einem Prozessorkern durchgeführt und die benötigte Zeit für die Prozessoptimierung signifikant reduziert werden.

# A Anhang

In der nachfolgenden Tabelle sind die Rohdaten der Optimierungsläufe für die Prozessoptimierung zusammengefasst.

**Tabelle A.1:** Rohdaten der Prozessoptimierung; zu jedem Optimierungslauf ist eine fortlaufende Nummer, die Detaillierungsstufe DS, das verwendete Optimierungsprogramm, der Startpunkt SP, die Wiederholung, die Zahl der Simulationsaufrufe  $n_{\text{Sim}}$ , die benötigte Zeit  $t$ , die erreichte Kaltgaseffizienz  $\eta_{\text{KG}}$  und der Maximalwert aller Nebenbedingungen  $g(x)$  und  $h(x)$  gezeigt; für Lösungen mit Simulationsfehlern sind die letzten beiden Größen nicht relevant und daher ggf. nicht aufgeführt; die fortlaufenden Nummern der jeweils besten Optimierungsläufe jeder Detaillierungsstufe sind mit \* gekennzeichnet

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
001	1	fmincon(v)	1	1	208	0.59	73.9825	$-7.56 \cdot 10^{-1}$
002	1	fmincon(v)	1	2	208	0.58	73.9825	$-7.56 \cdot 10^{-1}$
003	1	fmincon(v)	1	3	208	0.57	73.9825	$-7.56 \cdot 10^{-1}$
004	1	fmincon(v)	1	4	208	0.57	73.9825	$-7.56 \cdot 10^{-1}$
005	1	fmincon(v)	1	5	302	0.84	73.9988	$-8.48 \cdot 10^{-1}$
006	1	fmincon(v)	2	1	294	0.83	66.2006	$-3.93 \cdot 10^2$
007	1	fmincon(v)	2	2	291	0.82	66.1925	$-3.93 \cdot 10^2$
008	1	fmincon(v)	2	3	291	0.82	66.1925	$-3.93 \cdot 10^2$
009	1	fmincon(v)	2	4	291	0.82	66.1925	$-3.93 \cdot 10^2$
010	1	fmincon(v)	2	5	291	0.82	66.1925	$-3.93 \cdot 10^2$
011	1	fmincon(v)	3	1	478	1.31	71.0233	$-1.73 \cdot 10^2$
012	1	fmincon(v)	3	2	433	1.17	73.8828	-1.80
013	1	fmincon(v)	3	3	612	1.65	74.0299	$-2.51 \cdot 10^{-4}$
014	1	fmincon(v)	3	4	201	0.55	73.9714	$3.70 \cdot 10^{-1}$
015	1	fmincon(v)	3	5	177	0.48	73.9384	-5.64
016	1	fmincon(v)	4	1	272	0.74	74.0326	$2.65 \cdot 10^{-2}$
017	1	fmincon(v)	4	2	272	0.75	74.0326	$2.68 \cdot 10^{-2}$
018	1	fmincon(v)	4	3	272	0.74	74.0326	$2.63 \cdot 10^{-2}$
019	1	fmincon(v)	4	4	272	0.75	74.0326	$2.63 \cdot 10^{-2}$
020	1	fmincon(v)	4	5	272	0.75	74.0326	$2.63 \cdot 10^{-2}$
021	1	fmincon(v)	5	1	300	0.81	74.0268	$-4.54 \cdot 10^{-1}$
022	1	fmincon(v)	5	2	419	1.14	74.0268	$-4.64 \cdot 10^{-1}$
023	1	fmincon(v)	5	3	352	0.96	74.0297	$-2.11 \cdot 10^{-1}$
024	1	fmincon(v)	5	4	300	0.81	74.0268	$-4.65 \cdot 10^{-1}$
025	1	fmincon(v)	5	5	300	0.81	74.0268	$-4.65 \cdot 10^{-1}$
026	1	fmincon(v)	6	1	632	1.75	69.4390	$-2.40 \cdot 10^2$
027	1	fmincon(v)	6	2	895	2.45	69.4415	$-2.39 \cdot 10^2$
028	1	fmincon(v)	6	3	527	1.47	69.3972	$-2.42 \cdot 10^2$
029	1	fmincon(v)	6	4	527	1.47	69.3976	$-2.42 \cdot 10^2$
030	1	fmincon(v)	6	5	527	1.48	69.3975	$-2.42 \cdot 10^2$
031	1	fmincon(v)	7	1	328	0.93	66.5571	$-3.82 \cdot 10^2$
032	1	fmincon(v)	7	2	592	1.68	67.1570	$-3.47 \cdot 10^2$
033	1	fmincon(v)	7	3	592	1.67	67.1570	$-3.47 \cdot 10^2$
034	1	fmincon(v)	7	4	592	1.67	67.1570	$-3.47 \cdot 10^2$
035	1	fmincon(v)	7	5	592	1.67	67.1570	$-3.47 \cdot 10^2$
036	1	fmincon(v)	8	1	289	0.78	74.0342	$1.52 \cdot 10^{-2}$
037	1	fmincon(v)	8	2	459	1.24	73.9536	$2.11 \cdot 10^{-2}$
038	1	fmincon(v)	8	3	621	1.69	73.8813	$1.05 \cdot 10^{-2}$
039	1	fmincon(v)	8	4	757	2.04	74.0332	$-4.84 \cdot 10^{-2}$
040	1	fmincon(v)	8	5	518	1.41	74.0146	$-7.84 \cdot 10^{-1}$
041	1	fmincon(v)	9	1	382	1.06	73.7318	$-8.36 \cdot 10^{-1}$
042	1	fmincon(v)	9	2	290	0.79	73.7599	$7.22 \cdot 10^{-3}$
043	1	fmincon(v)	9	3	553	1.54	73.7087	-1.03
044	1	fmincon(v)	9	4	563	1.57	73.7101	$-9.94 \cdot 10^{-1}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
045	1	fmincon(v)	9	5	341	0.95	73.7309	$-8.38 \cdot 10^{-1}$
046	1	fmincon(v)	10	1	247	0.67	74.0219	$4.60 \cdot 10^{-3}$
047	1	fmincon(v)	10	2	222	0.60	74.0314	$-1.19 \cdot 10^{-1}$
048	1	fmincon(v)	10	3	305	0.83	74.0340	$6.41 \cdot 10^{-2}$
049	1	fmincon(v)	10	4	264	0.71	74.0316	$-1.02 \cdot 10^{-1}$
050	1	fmincon(v)	10	5	295	0.80	74.0292	$1.40 \cdot 10^{-2}$
051	1	fmincon(z)	1	1	377	0.96	74.0333	$-4.46 \cdot 10^{-2}$
052	1	fmincon(z)	1	2	377	0.96	74.0333	$-4.43 \cdot 10^{-2}$
053	1	fmincon(z)	1	3	376	0.96	74.0333	$-4.44 \cdot 10^{-2}$
054	1	fmincon(z)	1	4	376	0.96	74.0333	$-4.44 \cdot 10^{-2}$
055	1	fmincon(z)	1	5	377	0.97	74.0333	$-4.46 \cdot 10^{-2}$
056	1	fmincon(z)	2	1	438	1.15	74.0263	$-3.96 \cdot 10^{-1}$
057	1	fmincon(z)	2	2	436	1.14	74.0262	$-3.97 \cdot 10^{-1}$
058	1	fmincon(z)	2	3	436	1.14	74.0262	$-3.97 \cdot 10^{-1}$
059	1	fmincon(z)	2	4	348	0.90	74.0318	$-3.62 \cdot 10^{-2}$
060	1	fmincon(z)	2	5	328	0.84	74.0263	$-3.93 \cdot 10^{-1}$
061	1	fmincon(z)	3	1	250	0.67	72.6138	$-1.02 \cdot 10^2$
062	1	fmincon(z)	3	2	249	0.66	72.6147	$-1.02 \cdot 10^2$
063	1	fmincon(z)	3	3	249	0.66	72.6147	$-1.02 \cdot 10^2$
064	1	fmincon(z)	3	4	249	0.66	72.6147	$-1.02 \cdot 10^2$
065	1	fmincon(z)	3	5	249	0.66	72.6147	$-1.02 \cdot 10^2$
066	1	fmincon(z)	4	1	375	0.97	74.0324	$-2.12 \cdot 10^{-2}$
067	1	fmincon(z)	4	2	375	0.97	74.0324	$-2.08 \cdot 10^{-2}$
068	1	fmincon(z)	4	3	375	0.97	74.0324	$-2.12 \cdot 10^{-2}$
069	1	fmincon(z)	4	4	375	0.97	74.0324	$-2.12 \cdot 10^{-2}$
070	1	fmincon(z)	4	5	375	0.98	74.0324	$-2.12 \cdot 10^{-2}$
071	1	fmincon(z)	5	1	350	0.91	74.0160	-1.10
072	1	fmincon(z)	5	2	350	0.91	74.0160	-1.10
073	1	fmincon(z)	5	3	350	0.91	74.0160	-1.10
074	1	fmincon(z)	5	4	350	0.91	74.0160	-1.10
075	1	fmincon(z)	5	5	350	0.91	74.0160	-1.10
076	1	fmincon(z)	6	1	400	1.07	73.3503	$-3.54 \cdot 10^1$
077	1	fmincon(z)	6	2	366	0.97	73.9483	$-8.77 \cdot 10^{-2}$
078	1	fmincon(z)	6	3	364	0.96	73.9482	$-9.46 \cdot 10^{-2}$
079	1	fmincon(z)	6	4	365	0.96	73.9482	$-9.46 \cdot 10^{-2}$
080	1	fmincon(z)	6	5	535	1.37	74.0289	$-1.88 \cdot 10^{-1}$
081	1	fmincon(z)	7	1	303	0.79	74.0321	$-4.78 \cdot 10^{-3}$
082	1	fmincon(z)	7	2	303	0.79	74.0322	$-2.43 \cdot 10^{-3}$
083	1	fmincon(z)	7	3	303	0.79	74.0322	$-2.43 \cdot 10^{-3}$
084	1	fmincon(z)	7	4	303	0.79	74.0321	$-4.78 \cdot 10^{-3}$
085	1	fmincon(z)	7	5	303	0.79	74.0321	$-4.78 \cdot 10^{-3}$
086	1	fmincon(z)	8	1	622	1.62	74.0132	$4.54 \cdot 10^{-2}$
087	1	fmincon(z)	8	2	622	1.63	74.0132	$4.34 \cdot 10^{-2}$
088	1	fmincon(z)	8	3	622	1.62	74.0132	$4.34 \cdot 10^{-2}$
089	1	fmincon(z)	8	4	622	1.63	74.0132	$4.34 \cdot 10^{-2}$
090	1	fmincon(z)	8	5	622	1.63	74.0132	$4.34 \cdot 10^{-2}$
091	1	fmincon(z)	9	1	291	0.76	74.0299	$-1.71 \cdot 10^{-1}$
092	1	fmincon(z)	9	2	291	0.76	74.0299	$-1.71 \cdot 10^{-1}$
093	1	fmincon(z)	9	3	291	0.76	74.0299	$-1.71 \cdot 10^{-1}$
094	1	fmincon(z)	9	4	292	0.76	74.0299	$-1.71 \cdot 10^{-1}$
095	1	fmincon(z)	9	5	291	0.76	74.0299	$-1.71 \cdot 10^{-1}$
096	1	fmincon(z)	10	1	335	0.88	74.0326	$-2.71 \cdot 10^{-2}$
097	1	fmincon(z)	10	2	266	0.69	74.0326	$-2.70 \cdot 10^{-2}$
098	1	fmincon(z)	10	3	335	0.88	74.0326	$-2.71 \cdot 10^{-2}$
099	1	fmincon(z)	10	4	336	0.88	74.0326	$-2.70 \cdot 10^{-2}$
100	1	fmincon(z)	10	5	334	0.88	74.0326	$-2.67 \cdot 10^{-2}$
101	1	IPOPT(v)	1	1	66	0.28	-	-
102	1	IPOPT(v)	1	2	66	0.19	-	-
103	1	IPOPT(v)	1	3	66	0.19	-	-
104	1	IPOPT(v)	1	4	66	0.19	-	-
105	1	IPOPT(v)	1	5	66	0.19	-	-

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
106	1	IPOPT(v)	2	1	81	0.23	-	-
107	1	IPOPT(v)	2	2	81	0.23	-	-
108	1	IPOPT(v)	2	3	81	0.23	-	-
109	1	IPOPT(v)	2	4	81	0.23	-	-
110	1	IPOPT(v)	2	5	81	0.23	-	-
111	1	IPOPT(v)	3	1	1793	4.61	74.0334	$-1.71 \cdot 10^{-2}$
112	1	IPOPT(v)	3	2	876	2.19	74.0335	$-1.80 \cdot 10^{-5}$
113	1	IPOPT(v)	3	3	990	2.52	74.0336	$-1.79 \cdot 10^{-2}$
114	1	IPOPT(v)	3	4	772	2.04	74.0213	$-2.86 \cdot 10^{-1}$
115	1	IPOPT(v)	3	5	346	0.93	73.8425	-5.89
116	1	IPOPT(v)	4	1	652	1.77	73.9228	-2.83
117	1	IPOPT(v)	4	2	281	0.78	70.7927	$-5.74 \cdot 10^1$
118	1	IPOPT(v)	4	3	1200	3.12	74.0328	$-9.37 \cdot 10^{-2}$
119	1	IPOPT(v)	4	4	272	0.75	70.7112	$-6.00 \cdot 10^1$
120	1	IPOPT(v)	4	5	558	1.49	74.0012	$-5.90 \cdot 10^{-1}$
121	1	IPOPT(v)	5	1	654	1.72	74.0134	$-6.19 \cdot 10^{-1}$
122	1	IPOPT(v)	5	2	1333	3.41	74.0327	$2.98 \cdot 10^{-2}$
123	1	IPOPT(v)	5	3	916	2.35	74.0344	$1.12 \cdot 10^{-2}$
124	1	IPOPT(v)	5	4	2290	5.92	73.5880	$-6.09 \cdot 10^{-2}$
125	1	IPOPT(v)	5	5	1212	3.06	74.0335	$2.02 \cdot 10^{-3}$
126	1	IPOPT(v)	6	1	888	2.36	71.8375	$-8.88 \cdot 10^1$
127	1	IPOPT(v)	6	2	545	1.49	-	-
128	1	IPOPT(v)	6	3	824	2.16	73.9268	-3.37
129	1	IPOPT(v)	6	4	744	1.87	74.0334	$1.39 \cdot 10^{-2}$
130	1	IPOPT(v)	6	5	2465	6.24	74.0325	$-6.31 \cdot 10^{-2}$
131	1	IPOPT(v)	7	1	776	2.09	73.9538	-1.63
132	1	IPOPT(v)	7	2	513	1.35	74.0342	$2.35 \cdot 10^{-2}$
133	1	IPOPT(v)	7	3	431	1.14	73.5341	-5.45
134	1	IPOPT(v)	7	4	353	0.96	72.9185	$-2.39 \cdot 10^1$
135	1	IPOPT(v)	7	5	1147	3.05	74.0299	$-5.16 \cdot 10^{-2}$
136	1	IPOPT(v)	8	1	594	1.61	73.9007	-1.91
137	1	IPOPT(v)	8	2	1236	3.13	68.8387	$-1.41 \cdot 10^2$
138	1	IPOPT(v)	8	3	400	1.06	73.9865	$-1.72 \cdot 10^{-1}$
139	1	IPOPT(v)	8	4	761	2.00	74.0073	-1.21
140	1	IPOPT(v)	8	5	724	1.90	74.0263	$-3.59 \cdot 10^{-1}$
141	1	IPOPT(v)	9	1	838	2.19	74.0012	$-5.87 \cdot 10^{-1}$
142	1	IPOPT(v)	9	2	1304	3.48	74.0342	$9.06 \cdot 10^{-3}$
143	1	IPOPT(v)	9	3	367	0.98	74.0097	$-8.10 \cdot 10^{-1}$
144	1	IPOPT(v)	9	4	508	1.32	74.0242	$-2.93 \cdot 10^{-1}$
145	1	IPOPT(v)	9	5	439	1.15	74.0225	$-3.67 \cdot 10^{-1}$
146	1	IPOPT(v)	10	1	570	1.47	74.0339	$-2.86 \cdot 10^{-2}$
147	1	IPOPT(v)	10	2	653	1.64	74.0335	$-7.18 \cdot 10^{-5}$
148	1	IPOPT(v)	10	3	1348	3.51	73.9195	-2.10
149	1	IPOPT(v)	10	4	2469	6.21	74.0335	$3.44 \cdot 10^{-4}$
150	1	IPOPT(v)	10	5	932	2.38	74.0323	$1.70 \cdot 10^{-3}$
151	1	IPOPT(z)	1	1	677	1.71	74.0320	$-4.62 \cdot 10^{-4}$
152	1	IPOPT(z)	1	2	677	1.70	74.0320	$-4.62 \cdot 10^{-4}$
153	1	IPOPT(z)	1	3	677	1.70	74.0320	$-4.62 \cdot 10^{-4}$
154	1	IPOPT(z)	1	4	677	1.70	74.0320	$-4.62 \cdot 10^{-4}$
155	1	IPOPT(z)	1	5	677	1.70	74.0320	$-4.62 \cdot 10^{-4}$
156	1	IPOPT(z)	2	1	1389	3.49	74.0317	$-1.22 \cdot 10^{-3}$
157	1	IPOPT(z)	2	2	1308	3.38	73.0325	$-2.49 \cdot 10^1$
158	1	IPOPT(z)	2	3	1449	3.61	74.0323	$5.69 \cdot 10^{-2}$
159	1	IPOPT(z)	2	4	3413	8.52	74.0317	$-1.14 \cdot 10^{-2}$
160	1	IPOPT(z)	2	5	1004	2.52	74.0319	$1.75 \cdot 10^{-4}$
161	1	IPOPT(z)	3	1	709	1.76	74.0322	$5.36 \cdot 10^{-2}$
162	1	IPOPT(z)	3	2	1179	2.90	74.0319	$-2.28 \cdot 10^{-4}$
163	1	IPOPT(z)	3	3	2048	5.05	74.0320	$1.88 \cdot 10^{-2}$
164	1	IPOPT(z)	3	4	596	1.48	74.0320	$-1.19 \cdot 10^{-4}$
165	1	IPOPT(z)	3	5	943	2.33	74.0320	$3.23 \cdot 10^{-2}$
166	1	IPOPT(z)	4	1	778	1.93	74.0320	$8.78 \cdot 10^{-5}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
167	1	IPOPT(z)	4	2	778	1.93	74.0320	$8.16 \cdot 10^{-5}$
168	1	IPOPT(z)	4	3	778	1.93	74.0320	$8.36 \cdot 10^{-5}$
169	1	IPOPT(z)	4	4	778	1.93	74.0320	$7.99 \cdot 10^{-5}$
170	1	IPOPT(z)	4	5	778	1.93	74.0320	$7.89 \cdot 10^{-5}$
171	1	IPOPT(z)	5	1	1053	2.60	74.0320	$1.09 \cdot 10^{-3}$
172	1	IPOPT(z)	5	2	1098	2.71	74.0320	$5.77 \cdot 10^{-4}$
173	1	IPOPT(z)	5	3	1053	2.59	74.0320	$1.09 \cdot 10^{-3}$
174	1	IPOPT(z)	5	4	1053	2.59	74.0320	$1.09 \cdot 10^{-3}$
175	1	IPOPT(z)	5	5	1053	2.59	74.0320	$1.09 \cdot 10^{-3}$
176	1	IPOPT(z)	6	1	2504	6.37	74.0320	$2.03 \cdot 10^{-4}$
177	1	IPOPT(z)	6	2	3253	8.23	74.0323	$6.11 \cdot 10^{-2}$
178	1	IPOPT(z)	6	3	2553	6.42	74.0317	$-1.73 \cdot 10^{-4}$
179	1	IPOPT(z)	6	4	2926	7.36	74.0323	$6.35 \cdot 10^{-2}$
180	1	IPOPT(z)	6	5	1020	2.58	72.8285	$-7.87 \cdot 10^1$
181	1	IPOPT(z)	7	1	646	1.60	74.0320	$-4.72 \cdot 10^{-5}$
182	1	IPOPT(z)	7	2	905	2.25	74.0316	$-1.52 \cdot 10^{-2}$
183	1	IPOPT(z)	7	3	1386	3.42	74.0320	$-1.29 \cdot 10^{-3}$
184	1	IPOPT(z)	7	4	904	2.24	74.0316	$-1.45 \cdot 10^{-2}$
185	1	IPOPT(z)	7	5	1386	3.42	74.0320	$-1.08 \cdot 10^{-3}$
186	1	IPOPT(z)	8	1	1260	3.18	73.3208	$-4.39 \cdot 10^1$
187	1	IPOPT(z)	8	2	1148	2.88	74.0320	$6.27 \cdot 10^{-5}$
188	1	IPOPT(z)	8	3	827	2.07	74.0319	$-1.81 \cdot 10^{-4}$
189	1	IPOPT(z)	8	4	1040	2.64	73.9928	$-6.66 \cdot 10^{-1}$
190	1	IPOPT(z)	8	5	1150	2.87	74.0317	$-7.35 \cdot 10^{-3}$
191	1	IPOPT(z)	9	1	1817	4.61	74.0320	$-1.35 \cdot 10^{-4}$
192	1	IPOPT(z)	9	2	2014	5.02	74.0321	$4.00 \cdot 10^{-2}$
193	1	IPOPT(z)	9	3	1216	3.05	74.0320	$1.66 \cdot 10^{-4}$
194	1	IPOPT(z)	9	4	4005	10.16	74.0320	$-4.41 \cdot 10^{-4}$
195	1	IPOPT(z)	9	5	1416	3.56	74.0320	$-1.52 \cdot 10^{-5}$
196	1	IPOPT(z)	10	1	2073	5.27	69.8631	$-7.34 \cdot 10^1$
197	1	IPOPT(z)	10	2	1769	4.44	74.0320	$4.35 \cdot 10^{-4}$
198	1	IPOPT(z)	10	3	1921	4.83	74.0320	$-1.77 \cdot 10^{-4}$
199	1	IPOPT(z)	10	4	2622	6.71	74.0320	$3.07 \cdot 10^{-2}$
200	1	IPOPT(z)	10	5	2270	5.72	74.0320	$2.69 \cdot 10^{-5}$
201	1	COBYLA	1	1	404	1.22	72.0444	$1.12 \cdot 10^{-3}$
202	1	COBYLA	1	2	404	1.21	72.0444	$1.12 \cdot 10^{-3}$
203	1	COBYLA	1	3	404	1.21	72.0444	$1.12 \cdot 10^{-3}$
204	1	COBYLA	1	4	404	1.21	72.0444	$1.12 \cdot 10^{-3}$
205	1	COBYLA	1	5	404	1.21	72.0444	$1.12 \cdot 10^{-3}$
206	1	COBYLA	2	1	243	0.71	73.0270	$7.78 \cdot 10^{-4}$
207	1	COBYLA	2	2	251	0.73	73.3533	$-6.94 \cdot 10^{-4}$
208	1	COBYLA	2	3	293	0.86	73.2412	$6.50 \cdot 10^{-4}$
209	1	COBYLA	2	4	312	0.92	73.5684	$1.90 \cdot 10^{-4}$
210	1	COBYLA	2	5	281	0.83	73.0840	$-3.46 \cdot 10^{-4}$
211	1	COBYLA	3	1	320	0.92	73.7231	$-4.55 \cdot 10^{-5}$
212	1	COBYLA	3	2	400	1.16	73.9005	$2.20 \cdot 10^{-3}$
213	1	COBYLA	3	3	311	0.90	73.7602	$6.79 \cdot 10^{-4}$
214	1	COBYLA	3	4	265	0.77	73.7614	$-2.87 \cdot 10^{-4}$
215	1	COBYLA	3	5	340	0.98	73.7026	$1.02 \cdot 10^{-3}$
216	1	COBYLA	4	1	351	1.02	73.9282	$1.01 \cdot 10^{-4}$
217	1	COBYLA	4	2	264	0.78	73.8123	$2.11 \cdot 10^{-2}$
218	1	COBYLA	4	3	324	0.95	73.9119	$-8.86 \cdot 10^{-5}$
219	1	COBYLA	4	4	284	0.83	73.9412	$1.57 \cdot 10^{-5}$
220	1	COBYLA	4	5	320	0.93	73.9277	$1.32 \cdot 10^{-3}$
221	1	COBYLA	5	1	307	0.89	73.9838	$3.67 \cdot 10^{-4}$
222	1	COBYLA	5	2	307	0.89	73.9838	$3.67 \cdot 10^{-4}$
223	1	COBYLA	5	3	307	0.89	73.9838	$3.67 \cdot 10^{-4}$
224	1	COBYLA	5	4	307	0.89	73.9838	$3.67 \cdot 10^{-4}$
225	1	COBYLA	5	5	307	0.88	73.9838	$3.67 \cdot 10^{-4}$
226	1	COBYLA	6	1	325	0.95	73.4337	$-1.90 \cdot 10^{-5}$
227	1	COBYLA	6	2	274	0.79	71.2068	$3.02 \cdot 10^{-3}$
228	1	COBYLA	6	3	409	1.19	72.2847	$2.70 \cdot 10^{-3}$
229	1	COBYLA	6	4	495	1.42	71.6381	$1.24 \cdot 10^{-2}$
230	1	COBYLA	6	5	661	1.89	72.2424	$-3.31 \cdot 10^{-4}$
231	1	COBYLA	7	1	341	1.08	-	-

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
232	1	COBYLA	7	2	452	1.44	-	-
233	1	COBYLA	7	3	415	1.31	-	-
234	1	COBYLA	7	4	446	1.40	-	-
235	1	COBYLA	7	5	353	1.14	-	-
236	1	COBYLA	8	1	457	1.35	72.0040	$9.39 \cdot 10^{-3}$
237	1	COBYLA	8	2	625	1.83	73.2494	$5.20 \cdot 10^{-2}$
238	1	COBYLA	8	3	454	1.35	73.5583	$6.65 \cdot 10^{-5}$
239	1	COBYLA	8	4	455	1.35	73.4994	$2.34 \cdot 10^{-3}$
240	1	COBYLA	8	5	467	1.38	72.9119	$2.55 \cdot 10^{-2}$
241	1	COBYLA	9	1	448	1.29	72.6465	$3.15 \cdot 10^{-2}$
242	1	COBYLA	9	2	368	1.08	72.9374	$2.34 \cdot 10^{-4}$
243	1	COBYLA	9	3	252	0.75	72.7539	$2.83 \cdot 10^{-3}$
244	1	COBYLA	9	4	371	1.09	72.7867	$-6.90 \cdot 10^{-4}$
245	1	COBYLA	9	5	306	0.89	72.6808	$-1.46 \cdot 10^{-5}$
246	1	COBYLA	10	1	368	1.08	72.7236	$8.31 \cdot 10^{-3}$
247	1	COBYLA	10	2	306	0.89	72.6586	$1.89 \cdot 10^{-3}$
248	1	COBYLA	10	3	352	1.03	73.3362	$-3.27 \cdot 10^{-4}$
249	1	COBYLA	10	4	642	1.86	73.0377	$1.74 \cdot 10^{-3}$
250	1	COBYLA	10	5	325	0.95	73.4020	$2.54 \cdot 10^{-3}$
251	1	CMA-ES	1	1	13 862	40.11	74.0341	$-3.08 \cdot 10^{-5}$
252	1	CMA-ES	1	2	13 301	38.23	74.0342	$2.50 \cdot 10^{-3}$
253	1	CMA-ES	1	3	16 722	48.67	74.0342	$7.63 \cdot 10^{-4}$
254	1	CMA-ES	1	4	7999	25.00	74.0112	$-1.03 \cdot 10^{-5}$
255	1	CMA-ES	1	5	18 614	54.24	74.0340	$1.29 \cdot 10^{-3}$
256	1	CMA-ES	2	1	21 749	62.38	74.0343	$2.17 \cdot 10^{-3}$
257	1	CMA-ES	2	2	19 901	58.34	74.0343	$-6.39 \cdot 10^{-4}$
258	1	CMA-ES	2	3	22 629	65.60	74.0341	$1.44 \cdot 10^{-3}$
259	1	CMA-ES	2	4	20 220	59.57	74.0342	$1.92 \cdot 10^{-3}$
260	1	CMA-ES	2	5	12 014	34.86	74.0341	$1.02 \cdot 10^{-3}$
261	1	CMA-ES	3	1	37 358	110.71	74.0340	$-4.22 \cdot 10^{-8}$
262	1	CMA-ES	3	2	26 743	77.77	74.0345	$-7.94 \cdot 10^{-5}$
263	1	CMA-ES	3	3	25 599	73.91	74.0342	$2.96 \cdot 10^{-3}$
264	1	CMA-ES	3	4	20 825	60.35	74.0341	$6.91 \cdot 10^{-8}$
265	1	CMA-ES	3	5	15 930	45.92	74.0304	$3.60 \cdot 10^{-2}$
266	1	CMA-ES	4	1	14 489	41.94	74.0343	$1.85 \cdot 10^{-3}$
267	1	CMA-ES	4	2	14 555	42.26	74.0330	$8.91 \cdot 10^{-4}$
268	1	CMA-ES	4	3	21 991	72.63	74.0341	$-7.96 \cdot 10^{-6}$
269	1	CMA-ES	4	4	22 442	69.91	74.0342	$1.45 \cdot 10^{-3}$
270	1	CMA-ES	4	5	12 564	36.18	74.0344	$1.36 \cdot 10^{-3}$
271	1	CMA-ES	5	1	22 365	64.67	74.0343	$7.42 \cdot 10^{-4}$
272	1	CMA-ES	5	2	15 743	45.39	74.0341	$7.05 \cdot 10^{-6}$
273	1	CMA-ES	5	3	17 448	50.61	74.0345	$1.45 \cdot 10^{-3}$
274	1	CMA-ES	5	4	10 518	30.29	74.0341	$-1.36 \cdot 10^{-5}$
275	1	CMA-ES	5	5	32 001	93.85	74.0342	$8.92 \cdot 10^{-4}$
276	1	CMA-ES	6	1	33 838	99.76	74.0345	$1.49 \cdot 10^{-3}$
277	1	CMA-ES	6	2	19 868	57.38	74.0341	$1.68 \cdot 10^{-3}$
278*	1	CMA-ES	6	3	22 761	65.95	74.0346	$7.50 \cdot 10^{-5}$
279	1	CMA-ES	6	4	12 014	34.36	71.6641	$7.96 \cdot 10^{-4}$
280	1	CMA-ES	6	5	24 620	70.66	74.0340	$2.95 \cdot 10^{-2}$
281	1	CMA-ES	7	1	9726	28.27	74.0064	$-1.52 \cdot 10^{-5}$
282	1	CMA-ES	7	2	16 733	48.21	74.0338	$1.43 \cdot 10^{-3}$
283	1	CMA-ES	7	3	15 281	44.10	74.0341	$-1.60 \cdot 10^{-5}$
284	1	CMA-ES	7	4	15 633	45.07	74.0342	$-1.16 \cdot 10^{-5}$
285	1	CMA-ES	7	5	19 252	55.74	74.0345	$-1.02 \cdot 10^{-6}$
286	1	CMA-ES	8	1	21 419	62.23	74.0342	$1.38 \cdot 10^{-3}$
287	1	CMA-ES	8	2	20 253	58.80	74.0342	$-5.41 \cdot 10^{-7}$
288	1	CMA-ES	8	3	59 446	180.41	74.0342	$6.12 \cdot 10^{-4}$
289	1	CMA-ES	8	4	14 731	41.98	74.0341	$-9.39 \cdot 10^{-6}$
290	1	CMA-ES	8	5	33 727	97.12	74.0342	$2.08 \cdot 10^{-3}$
291	1	CMA-ES	9	1	10 606	34.42	74.0328	$1.36 \cdot 10^{-2}$
292	1	CMA-ES	9	2	16 513	51.72	74.0343	$1.87 \cdot 10^{-3}$
293	1	CMA-ES	9	3	20 572	59.65	74.0342	$1.32 \cdot 10^{-3}$
294	1	CMA-ES	9	4	19 076	55.71	74.0343	$7.22 \cdot 10^{-4}$
295	1	CMA-ES	9	5	16 029	46.12	74.0343	$-5.07 \cdot 10^{-6}$
296	1	CMA-ES	10	1	18 383	53.44	74.0344	$-6.80 \cdot 10^{-5}$
297	1	CMA-ES	10	2	21 958	63.69	74.0343	$8.64 \cdot 10^{-4}$
298	1	CMA-ES	10	3	18 581	53.66	74.0342	$-3.66 \cdot 10^{-6}$
299	1	CMA-ES	10	4	21 485	62.12	74.0342	$7.04 \cdot 10^{-4}$
300	1	CMA-ES	10	5	20 110	57.90	74.0341	$6.23 \cdot 10^{-4}$
301	1	GA	3	1	21 897	64.36	73.4878	$-1.84 \cdot 10^{-2}$
302	1	GA	3	2	17 737	52.82	73.0614	$3.17 \cdot 10^{-2}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
303	1	GA	3	3	19 452	57.93	73.5423	$1.02 \cdot 10^{-4}$
304	1	GA	3	4	23 102	69.07	73.1937	$2.39 \cdot 10^{-2}$
305	1	GA	3	5	29 649	89.46	73.5703	$3.42 \cdot 10^{-2}$
306	2	fmincon(v)	1	1	537	6.77	72.0745	$4.57 \cdot 10^{-4}$
307	2	fmincon(v)	1	2	387	4.61	72.0738	$1.29 \cdot 10^{-3}$
308	2	fmincon(v)	1	3	597	7.36	72.0746	$5.31 \cdot 10^{-2}$
309	2	fmincon(v)	1	4	347	4.05	72.0741	$2.02 \cdot 10^{-2}$
310	2	fmincon(v)	1	5	629	7.82	72.0725	$1.18 \cdot 10^{-3}$
311	2	fmincon(v)	2	1	645	8.04	72.0742	$-1.17 \cdot 10^{-2}$
312	2	fmincon(v)	2	2	462	5.22	72.0736	$1.93 \cdot 10^{-2}$
313	2	fmincon(v)	2	3	645	7.81	72.0743	$1.84 \cdot 10^{-3}$
314	2	fmincon(v)	2	4	638	7.97	72.0740	$2.91 \cdot 10^{-4}$
315	2	fmincon(v)	2	5	766	9.48	72.0739	$-9.94 \cdot 10^{-3}$
316	2	fmincon(v)	3	1	115	0.91	59.2968	$-2.17 \cdot 10^1$
317	2	fmincon(v)	3	2	115	0.88	59.0519	$-2.18 \cdot 10^1$
318	2	fmincon(v)	3	3	242	1.98	59.3942	$-2.17 \cdot 10^1$
319	2	fmincon(v)	3	4	242	1.98	59.3936	$-2.17 \cdot 10^1$
320	2	fmincon(v)	3	5	242	1.98	59.3935	$-2.17 \cdot 10^1$
321	2	fmincon(v)	4	1	385	4.59	72.0746	$3.77 \cdot 10^{-4}$
322	2	fmincon(v)	4	2	794	9.21	72.0747	$1.23 \cdot 10^{-3}$
323	2	fmincon(v)	4	3	230	2.79	72.0728	$1.67 \cdot 10^{-2}$
324	2	fmincon(v)	4	4	447	5.39	72.0746	$2.46 \cdot 10^{-3}$
325	2	fmincon(v)	4	5	230	2.80	72.0728	$1.67 \cdot 10^{-2}$
326	2	fmincon(v)	5	1	351	4.17	72.0741	$-1.08 \cdot 10^{-2}$
327	2	fmincon(v)	5	2	542	6.94	72.0742	$1.33 \cdot 10^{-2}$
328	2	fmincon(v)	5	3	725	9.35	72.0744	$1.17 \cdot 10^{-2}$
329	2	fmincon(v)	5	4	654	8.35	72.0743	$1.22 \cdot 10^{-3}$
330	2	fmincon(v)	5	5	807	10.42	72.0743	$6.79 \cdot 10^{-3}$
331	2	fmincon(v)	6	1	587	7.56	72.0745	$-8.61 \cdot 10^{-4}$
332	2	fmincon(v)	6	2	575	7.38	72.0743	$2.02 \cdot 10^{-3}$
333	2	fmincon(v)	6	3	527	6.73	72.0744	$1.07 \cdot 10^{-2}$
334	2	fmincon(v)	6	4	655	8.42	72.0743	$1.12 \cdot 10^{-4}$
335	2	fmincon(v)	6	5	620	7.47	72.0739	$1.44 \cdot 10^{-3}$
336	2	fmincon(v)	7	1	385	4.63	72.0744	$4.76 \cdot 10^{-3}$
337	2	fmincon(v)	7	2	805	9.97	72.0741	$6.48 \cdot 10^{-4}$
338	2	fmincon(v)	7	3	518	6.30	72.0743	$2.39 \cdot 10^{-2}$
339	2	fmincon(v)	7	4	578	7.67	72.0741	$-7.08 \cdot 10^{-4}$
340	2	fmincon(v)	7	5	365	4.31	72.0744	$3.30 \cdot 10^{-4}$
341	2	fmincon(v)	8	1	446	5.54	72.0735	$2.81 \cdot 10^{-2}$
342	2	fmincon(v)	8	2	435	5.25	72.0739	$2.69 \cdot 10^{-2}$
343	2	fmincon(v)	8	3	444	5.51	72.0735	$2.01 \cdot 10^{-2}$
344	2	fmincon(v)	8	4	466	5.86	72.0739	$2.52 \cdot 10^{-4}$
345	2	fmincon(v)	8	5	490	6.14	72.0743	$1.20 \cdot 10^{-3}$
346	2	fmincon(v)	9	1	733	9.04	72.0744	$4.02 \cdot 10^{-4}$
347	2	fmincon(v)	9	2	524	6.51	72.0741	$3.18 \cdot 10^{-2}$
348	2	fmincon(v)	9	3	627	7.77	72.0743	$1.33 \cdot 10^{-2}$
349	2	fmincon(v)	9	4	392	4.80	72.0743	$1.03 \cdot 10^{-3}$
350	2	fmincon(v)	9	5	712	9.10	72.0745	$1.44 \cdot 10^{-3}$
351	2	fmincon(v)	10	1	398	5.22	72.0741	$-2.42 \cdot 10^{-2}$
352	2	fmincon(v)	10	2	545	7.15	72.0744	$4.95 \cdot 10^{-4}$
353	2	fmincon(v)	10	3	463	6.12	72.0741	$2.17 \cdot 10^{-2}$
354	2	fmincon(v)	10	4	670	8.66	72.0743	$-1.43 \cdot 10^{-3}$
355	2	fmincon(v)	10	5	544	7.20	72.0744	$1.46 \cdot 10^{-2}$
356	2	fmincon(z)	1	1	660	7.49	72.0740	$5.73 \cdot 10^{-3}$
357	2	fmincon(z)	1	2	661	7.53	72.0740	$5.70 \cdot 10^{-3}$
358	2	fmincon(z)	1	3	662	7.49	72.0740	$6.28 \cdot 10^{-3}$
359	2	fmincon(z)	1	4	665	7.54	72.0740	$5.73 \cdot 10^{-3}$
360	2	fmincon(z)	1	5	663	7.53	72.0740	$6.28 \cdot 10^{-3}$
361	2	fmincon(z)	2	1	660	8.35	72.0747	$5.59 \cdot 10^{-2}$
362	2	fmincon(z)	2	2	781	9.84	72.0747	$7.95 \cdot 10^{-2}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)



Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
363	2	fmincon(z)	2	3	794	10.04	72.0747	$6.15 \cdot 10^{-2}$
364	2	fmincon(z)	2	4	660	8.29	72.0747	$5.59 \cdot 10^{-2}$
365	2	fmincon(z)	2	5	784	9.85	72.0747	$4.98 \cdot 10^{-2}$
366	2	fmincon(z)	3	1	145	1.12	59.2396	$-2.17 \cdot 10^1$
367	2	fmincon(z)	3	2	145	1.12	59.2394	$-2.17 \cdot 10^1$
368	2	fmincon(z)	3	3	145	1.12	59.2394	$-2.17 \cdot 10^1$
369	2	fmincon(z)	3	4	145	1.12	59.2394	$-2.17 \cdot 10^1$
370	2	fmincon(z)	3	5	145	1.12	59.2394	$-2.17 \cdot 10^1$
371	2	fmincon(z)	4	1	450	5.03	72.0743	$-1.38 \cdot 10^{-5}$
372	2	fmincon(z)	4	2	380	4.32	72.0743	$1.25 \cdot 10^{-3}$
373	2	fmincon(z)	4	3	334	3.73	72.0743	$1.76 \cdot 10^{-3}$
374	2	fmincon(z)	4	4	334	3.72	72.0743	$1.43 \cdot 10^{-3}$
375	2	fmincon(z)	4	5	377	4.28	72.0743	$7.47 \cdot 10^{-4}$
376	2	fmincon(z)	5	1	681	8.55	72.0744	$1.25 \cdot 10^{-3}$
377	2	fmincon(z)	5	2	681	8.56	72.0744	$1.25 \cdot 10^{-3}$
378	2	fmincon(z)	5	3	681	8.55	72.0744	$1.24 \cdot 10^{-3}$
379	2	fmincon(z)	5	4	681	8.54	72.0744	$1.25 \cdot 10^{-3}$
380	2	fmincon(z)	5	5	681	8.55	72.0744	$1.27 \cdot 10^{-3}$
381	2	fmincon(z)	6	1	471	5.61	72.0743	$1.79 \cdot 10^{-3}$
382	2	fmincon(z)	6	2	471	5.61	72.0743	$1.78 \cdot 10^{-3}$
383	2	fmincon(z)	6	3	471	5.62	72.0743	$1.77 \cdot 10^{-3}$
384	2	fmincon(z)	6	4	471	5.61	72.0743	$1.77 \cdot 10^{-3}$
385	2	fmincon(z)	6	5	471	5.60	72.0743	$1.78 \cdot 10^{-3}$
386	2	fmincon(z)	7	1	728	8.29	72.0744	$2.74 \cdot 10^{-3}$
387	2	fmincon(z)	7	2	728	8.28	72.0744	$2.71 \cdot 10^{-3}$
388	2	fmincon(z)	7	3	756	8.63	72.0744	$2.21 \cdot 10^{-3}$
389	2	fmincon(z)	7	4	730	8.34	72.0744	$1.97 \cdot 10^{-3}$
390	2	fmincon(z)	7	5	725	8.27	72.0744	$2.75 \cdot 10^{-3}$
391	2	fmincon(z)	8	1	874	10.27	72.0747	$7.28 \cdot 10^{-4}$
392	2	fmincon(z)	8	2	871	10.23	72.0747	$3.49 \cdot 10^{-4}$
393	2	fmincon(z)	8	3	874	10.26	72.0747	$4.63 \cdot 10^{-4}$
394	2	fmincon(z)	8	4	874	10.29	72.0747	$1.64 \cdot 10^{-3}$
395	2	fmincon(z)	8	5	874	10.26	72.0747	$1.66 \cdot 10^{-3}$
396	2	fmincon(z)	9	1	2097	25.96	72.0743	$-1.15 \cdot 10^{-5}$
397	2	fmincon(z)	9	2	1477	18.00	72.0743	$-6.17 \cdot 10^{-4}$
398	2	fmincon(z)	9	3	2780	34.85	72.0743	$-6.63 \cdot 10^{-5}$
399	2	fmincon(z)	9	4	3227	40.25	72.0743	$3.67 \cdot 10^{-4}$
400	2	fmincon(z)	9	5	2207	27.41	72.0743	$1.92 \cdot 10^{-4}$
401	2	fmincon(z)	10	1	471	5.73	72.0740	$2.44 \cdot 10^{-3}$
402	2	fmincon(z)	10	2	471	5.70	72.0740	$2.45 \cdot 10^{-3}$
403	2	fmincon(z)	10	3	471	5.72	72.0740	$2.46 \cdot 10^{-3}$
404	2	fmincon(z)	10	4	471	5.69	72.0740	$2.40 \cdot 10^{-3}$
405	2	fmincon(z)	10	5	471	5.82	72.0740	$2.41 \cdot 10^{-3}$
406	2	IPOPT(v)	1	1	780	8.27	72.0675	$-3.90 \cdot 10^{-6}$
407	2	IPOPT(v)	1	2	1386	14.49	72.0700	$-4.87 \cdot 10^{-3}$
408	2	IPOPT(v)	1	3	2349	26.19	72.0733	$5.70 \cdot 10^{-4}$
409	2	IPOPT(v)	1	4	2610	27.74	72.0739	$9.19 \cdot 10^{-7}$
410	2	IPOPT(v)	1	5	1316	13.70	72.0737	$-1.54 \cdot 10^{-2}$
411	2	IPOPT(v)	2	1	1914	20.45	72.0737	$-4.34 \cdot 10^{-3}$
412	2	IPOPT(v)	2	2	1809	19.63	72.0736	$-1.22 \cdot 10^{-2}$
413	2	IPOPT(v)	2	3	2807	30.12	72.0734	$-2.57 \cdot 10^{-2}$
414	2	IPOPT(v)	2	4	1852	20.85	72.0740	$1.39 \cdot 10^{-2}$
415	2	IPOPT(v)	2	5	1503	16.44	72.0737	$-1.05 \cdot 10^{-2}$
416	2	IPOPT(v)	3	1	1790	20.05	72.0737	$-7.12 \cdot 10^{-3}$
417	2	IPOPT(v)	3	2	831	9.06	72.0703	$-1.86 \cdot 10^{-2}$
418	2	IPOPT(v)	3	3	2270	24.03	72.0739	$1.14 \cdot 10^{-3}$
419	2	IPOPT(v)	3	4	967	10.80	72.0739	$-1.21 \cdot 10^{-6}$
420	2	IPOPT(v)	3	5	1207	13.34	72.0741	$2.68 \cdot 10^{-2}$
421	2	IPOPT(v)	4	1	890	9.63	72.0711	$-1.52 \cdot 10^{-2}$
422	2	IPOPT(v)	4	2	1980	20.93	72.0738	$3.44 \cdot 10^{-5}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
423	2	IPOPT(v)	4	3	2227	24.59	72.0730	$6.42 \cdot 10^{-3}$
424	2	IPOPT(v)	4	4	1403	15.32	72.0735	$2.37 \cdot 10^{-2}$
425	2	IPOPT(v)	4	5	1232	13.40	72.0737	$2.45 \cdot 10^{-2}$
426	2	IPOPT(v)	5	1	801	8.64	72.0735	$2.46 \cdot 10^{-2}$
427	2	IPOPT(v)	5	2	1472	16.17	72.0246	$-1.19 \cdot 10^{-1}$
428	2	IPOPT(v)	5	3	952	10.11	72.0733	$7.01 \cdot 10^{-3}$
429	2	IPOPT(v)	5	4	912	9.97	72.0737	$-6.57 \cdot 10^{-3}$
430	2	IPOPT(v)	5	5	1257	13.78	72.0736	$1.18 \cdot 10^{-2}$
431	2	IPOPT(v)	6	1	1201	12.54	72.0700	$4.41 \cdot 10^{-2}$
432	2	IPOPT(v)	6	2	1245	13.02	72.0739	$4.14 \cdot 10^{-2}$
433	2	IPOPT(v)	6	3	1923	20.70	72.0739	$3.10 \cdot 10^{-3}$
434	2	IPOPT(v)	6	4	862	9.20	72.0742	$5.38 \cdot 10^{-3}$
435	2	IPOPT(v)	6	5	1259	13.44	72.0734	$2.35 \cdot 10^{-2}$
436	2	IPOPT(v)	7	1	1590	16.70	72.0739	$5.84 \cdot 10^{-3}$
437	2	IPOPT(v)	7	2	1112	12.00	72.0725	$-2.37 \cdot 10^{-2}$
438	2	IPOPT(v)	7	3	550	5.87	72.0738	$-2.66 \cdot 10^{-3}$
439	2	IPOPT(v)	7	4	1292	14.34	72.0702	$-2.80 \cdot 10^{-2}$
440	2	IPOPT(v)	7	5	899	9.51	72.0733	$3.33 \cdot 10^{-2}$
441	2	IPOPT(v)	8	1	1832	19.54	72.0641	$3.70 \cdot 10^{-3}$
442	2	IPOPT(v)	8	2	1056	11.21	72.0736	$-4.70 \cdot 10^{-3}$
443	2	IPOPT(v)	8	3	1871	19.78	72.0739	$-4.77 \cdot 10^{-3}$
444	2	IPOPT(v)	8	4	1177	12.47	72.0743	$6.48 \cdot 10^{-2}$
445	2	IPOPT(v)	8	5	3613	39.89	72.0741	$-5.57 \cdot 10^{-4}$
446	2	IPOPT(v)	9	1	2095	22.77	72.0624	$1.85 \cdot 10^{-3}$
447	2	IPOPT(v)	9	2	2237	23.98	72.0734	$6.86 \cdot 10^{-2}$
448	2	IPOPT(v)	9	3	1360	14.66	72.0735	$2.24 \cdot 10^{-2}$
449	2	IPOPT(v)	9	4	1215	13.56	72.0726	$-3.94 \cdot 10^{-2}$
450	2	IPOPT(v)	9	5	1226	13.37	72.0741	$1.19 \cdot 10^{-2}$
451	2	IPOPT(v)	10	1	1178	12.43	72.0716	$-1.58 \cdot 10^{-1}$
452	2	IPOPT(v)	10	2	614	6.63	72.0739	$-2.95 \cdot 10^{-3}$
453	2	IPOPT(v)	10	3	1151	12.48	72.0737	$3.21 \cdot 10^{-2}$
454	2	IPOPT(v)	10	4	1045	11.14	72.0739	$3.81 \cdot 10^{-5}$
455	2	IPOPT(v)	10	5	779	8.40	72.0739	$-1.21 \cdot 10^{-3}$
456	2	IPOPT(z)	1	1	1334	14.57	72.0742	$3.27 \cdot 10^{-2}$
457	2	IPOPT(z)	1	2	1814	20.15	72.0747	$4.31 \cdot 10^{-2}$
458	2	IPOPT(z)	1	3	3423	37.57	72.0740	$-1.22 \cdot 10^{-3}$
459	2	IPOPT(z)	1	4	1194	12.93	72.0745	$-6.98 \cdot 10^{-3}$
460	2	IPOPT(z)	1	5	1594	17.56	72.0739	$1.22 \cdot 10^{-2}$
461	2	IPOPT(z)	2	1	1733	19.63	72.0747	$5.74 \cdot 10^{-4}$
462	2	IPOPT(z)	2	2	1538	17.13	72.0741	$-1.82 \cdot 10^{-3}$
463	2	IPOPT(z)	2	3	1344	15.17	72.0747	$3.61 \cdot 10^{-2}$
464	2	IPOPT(z)	2	4	1046	11.81	72.0746	$-1.65 \cdot 10^{-5}$
465	2	IPOPT(z)	2	5	1641	18.50	72.0743	$-2.70 \cdot 10^{-4}$
466	2	IPOPT(z)	3	1	1699	19.21	72.0747	$5.89 \cdot 10^{-5}$
467	2	IPOPT(z)	3	2	1409	15.71	72.0742	$-1.01 \cdot 10^{-2}$
468	2	IPOPT(z)	3	3	2031	22.82	72.0747	$1.49 \cdot 10^{-3}$
469	2	IPOPT(z)	3	4	1515	17.08	72.0743	$7.09 \cdot 10^{-4}$
470	2	IPOPT(z)	3	5	2006	22.65	72.0743	$-1.92 \cdot 10^{-3}$
471	2	IPOPT(z)	4	1	823	9.21	72.0742	$-6.42 \cdot 10^{-3}$
472	2	IPOPT(z)	4	2	1741	19.80	72.0747	$1.62 \cdot 10^{-4}$
473	2	IPOPT(z)	4	3	1426	16.09	72.0740	$-5.06 \cdot 10^{-4}$
474	2	IPOPT(z)	4	4	818	9.33	72.0743	$7.77 \cdot 10^{-4}$
475	2	IPOPT(z)	4	5	1086	12.25	72.0740	$4.64 \cdot 10^{-3}$
476	2	IPOPT(z)	5	1	975	11.03	72.0743	$-3.89 \cdot 10^{-3}$
477	2	IPOPT(z)	5	2	991	11.31	72.0744	$3.38 \cdot 10^{-2}$
478	2	IPOPT(z)	5	3	1815	20.67	72.0740	$-1.98 \cdot 10^{-2}$
479	2	IPOPT(z)	5	4	1112	12.65	72.0743	$-1.28 \cdot 10^{-2}$
480	2	IPOPT(z)	5	5	1780	20.43	72.0746	$1.80 \cdot 10^{-4}$
481	2	IPOPT(z)	6	1	1189	13.31	72.0746	$6.38 \cdot 10^{-6}$
482	2	IPOPT(z)	6	2	1442	16.16	72.0746	$-3.10 \cdot 10^{-5}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
483	2	IPOPT(z)	6	3	1261	14.03	72.0746	$3.64 \cdot 10^{-4}$
484	2	IPOPT(z)	6	4	978	10.98	72.0746	$7.35 \cdot 10^{-4}$
485	2	IPOPT(z)	6	5	1225	13.60	72.0746	$1.37 \cdot 10^{-3}$
486	2	IPOPT(z)	7	1	1570	17.40	72.0746	$2.32 \cdot 10^{-5}$
487	2	IPOPT(z)	7	2	994	10.82	72.0746	$-3.31 \cdot 10^{-4}$
488	2	IPOPT(z)	7	3	815	8.90	72.0746	$4.59 \cdot 10^{-5}$
489	2	IPOPT(z)	7	4	1718	19.10	72.0746	$-2.01 \cdot 10^{-4}$
490	2	IPOPT(z)	7	5	1285	14.15	72.0746	$2.12 \cdot 10^{-4}$
491	2	IPOPT(z)	8	1	1032	11.81	72.0743	$-1.81 \cdot 10^{-2}$
492	2	IPOPT(z)	8	2	976	10.85	72.0740	$-1.35 \cdot 10^{-3}$
493	2	IPOPT(z)	8	3	1494	16.60	72.0740	$2.99 \cdot 10^{-4}$
494	2	IPOPT(z)	8	4	638	7.12	72.0743	$2.36 \cdot 10^{-2}$
495	2	IPOPT(z)	8	5	745	8.26	72.0738	$-4.51 \cdot 10^{-2}$
496	2	IPOPT(z)	9	1	1280	14.16	72.0746	$4.71 \cdot 10^{-4}$
497	2	IPOPT(z)	9	2	1574	17.64	72.0746	$1.72 \cdot 10^{-4}$
498	2	IPOPT(z)	9	3	1279	14.35	72.0746	$4.23 \cdot 10^{-4}$
499	2	IPOPT(z)	9	4	1281	14.16	72.0746	$4.75 \cdot 10^{-4}$
500	2	IPOPT(z)	9	5	1280	14.15	72.0746	$4.11 \cdot 10^{-4}$
501	2	IPOPT(z)	10	1	998	11.30	72.0746	$1.36 \cdot 10^{-3}$
502	2	IPOPT(z)	10	2	762	8.64	72.0742	$-5.11 \cdot 10^{-3}$
503	2	IPOPT(z)	10	3	911	10.29	72.0746	$4.79 \cdot 10^{-2}$
504	2	IPOPT(z)	10	4	953	10.85	72.0747	$2.66 \cdot 10^{-3}$
505	2	IPOPT(z)	10	5	1809	20.45	72.0746	$2.90 \cdot 10^{-6}$
506	2	COBYLA	1	1	885	26.60	-	-
507	2	COBYLA	1	2	4597	110.97	-	-
508	2	COBYLA	1	3	954	28.01	-	-
509	2	COBYLA	1	4	770	23.46	-	-
510	2	COBYLA	1	5	2247	63.60	-	-
511	2	COBYLA	2	1	839	31.69	-	-
512	2	COBYLA	2	2	1738	42.62	-	-
513	2	COBYLA	2	3	2213	90.05	-	-
514	2	COBYLA	2	4	5167	113.15	-	-
515	2	COBYLA	2	5	1972	63.87	-	-
516	2	COBYLA	3	1	615	12.06	72.0743	$-2.67 \cdot 10^{-4}$
517	2	COBYLA	3	2	725	13.31	72.0745	$6.14 \cdot 10^{-5}$
518	2	COBYLA	3	3	729	12.92	72.0744	$-2.67 \cdot 10^{-5}$
519	2	COBYLA	3	4	612	11.48	72.0744	$1.95 \cdot 10^{-2}$
520*	2	COBYLA	3	5	496	9.23	72.0748	$4.72 \cdot 10^{-2}$
521	2	COBYLA	4	1	960	18.00	72.0741	$4.91 \cdot 10^{-5}$
522	2	COBYLA	4	2	529	10.08	72.0747	$-1.15 \cdot 10^{-4}$
523	2	COBYLA	4	3	685	12.99	72.0740	$2.66 \cdot 10^{-5}$
524	2	COBYLA	4	4	421	8.14	72.0742	$-1.01 \cdot 10^{-5}$
525	2	COBYLA	4	5	744	13.52	72.0742	$-8.04 \cdot 10^{-5}$
526	2	COBYLA	5	1	432	8.47	72.0744	$5.58 \cdot 10^{-2}$
527	2	COBYLA	5	2	617	11.00	72.0734	$6.36 \cdot 10^{-4}$
528	2	COBYLA	5	3	995	18.48	72.0742	$-2.51 \cdot 10^{-6}$
529	2	COBYLA	5	4	674	12.69	72.0745	$-7.12 \cdot 10^{-5}$
530	2	COBYLA	5	5	723	13.33	72.0741	$-3.69 \cdot 10^{-5}$
531	2	COBYLA	6	1	897	16.34	72.0743	$7.71 \cdot 10^{-5}$
532	2	COBYLA	6	2	615	11.99	72.0741	$7.32 \cdot 10^{-3}$
533	2	COBYLA	6	3	778	14.15	72.0744	$-1.24 \cdot 10^{-4}$
534	2	COBYLA	6	4	494	9.38	72.0743	$-2.63 \cdot 10^{-3}$
535	2	COBYLA	6	5	789	14.63	72.0741	$-1.90 \cdot 10^{-4}$
536	2	COBYLA	7	1	642	18.23	-	-
537	2	COBYLA	7	2	6838	188.51	-	-
538	2	COBYLA	7	3	9409	241.68	-	-
539	2	COBYLA	7	4	2031	52.56	-	-
540	2	COBYLA	7	5	1899	53.95	-	-
541	2	COBYLA	8	1	842	15.42	72.0743	$3.24 \cdot 10^{-5}$
542	2	COBYLA	8	2	810	14.79	72.0745	$2.35 \cdot 10^{-2}$
543	2	COBYLA	8	3	887	16.43	72.0745	$-1.30 \cdot 10^{-3}$
544	2	COBYLA	8	4	515	9.58	72.0743	$4.98 \cdot 10^{-4}$
545	2	COBYLA	8	5	479	9.53	72.0740	$1.86 \cdot 10^{-2}$
546	2	COBYLA	9	1	809	14.36	72.0741	$-7.13 \cdot 10^{-5}$
547	2	COBYLA	9	2	677	11.43	72.0743	$-3.23 \cdot 10^{-4}$
548	2	COBYLA	9	3	930	15.85	72.0741	$-3.30 \cdot 10^{-4}$
549	2	COBYLA	9	4	887	13.15	71.8116	$-1.39 \cdot 10^{-4}$
550	2	COBYLA	9	5	602	10.16	72.0741	$2.19 \cdot 10^{-2}$
551	2	COBYLA	10	1	1845	30.99	72.0687	$-1.40 \cdot 10^{-5}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
552	2	COBYLA	10	2	1124	19.57	72.0197	$2.48 \cdot 10^{-2}$
553	2	COBYLA	10	3	1448	23.79	72.0464	$-5.19 \cdot 10^{-3}$
554	2	COBYLA	10	4	1032	18.71	72.0198	$1.00 \cdot 10^{-2}$
555	2	COBYLA	10	5	1291	18.44	72.0190	$2.72 \cdot 10^{-2}$
556	2	CMA-ES	1	1	24 254	539.42	70.2386	$1.25 \cdot 10^{-6}$
557	2	CMA-ES	1	2	33 842	566.60	72.0744	$4.96 \cdot 10^{-2}$
558	2	CMA-ES	1	3	37 922	599.25	72.0747	$2.19 \cdot 10^{-4}$
559	2	CMA-ES	1	4	19 418	323.12	72.0745	$4.62 \cdot 10^{-2}$
560	2	CMA-ES	1	5	42 422	672.31	72.0740	$-4.32 \cdot 10^{-6}$
561	2	CMA-ES	2	1	41 174	631.94	72.0741	$6.42 \cdot 10^{-4}$
562	2	CMA-ES	2	2	62 630	977.60	72.0747	$4.79 \cdot 10^{-2}$
563	2	CMA-ES	2	3	43 178	714.68	72.0740	$3.83 \cdot 10^{-4}$
564	2	CMA-ES	2	4	33 794	517.22	72.0742	$8.62 \cdot 10^{-4}$
565	2	CMA-ES	2	5	25 550	423.41	72.0744	$4.75 \cdot 10^{-2}$
566	2	CMA-ES	3	1	37 814	591.65	72.0742	$9.78 \cdot 10^{-4}$
567	2	CMA-ES	3	2	50 150	805.32	72.0741	$1.24 \cdot 10^{-5}$
568	2	CMA-ES	3	3	55 262	876.62	72.0739	$2.84 \cdot 10^{-5}$
569	2	CMA-ES	3	4	43 346	715.06	72.0742	$1.29 \cdot 10^{-3}$
570	2	CMA-ES	3	5	33 050	522.67	72.0746	$1.54 \cdot 10^{-3}$
571	2	CMA-ES	4	1	57 074	933.69	72.0741	$4.49 \cdot 10^{-4}$
572	2	CMA-ES	4	2	56 378	928.14	72.0743	$6.73 \cdot 10^{-4}$
573	2	CMA-ES	4	3	54 914	936.20	72.0739	$4.45 \cdot 10^{-5}$
574	2	CMA-ES	4	4	45 098	685.36	72.0739	$2.26 \cdot 10^{-4}$
575	2	CMA-ES	4	5	42 242	665.55	72.0741	$1.47 \cdot 10^{-4}$
576	2	CMA-ES	5	1	9338	174.86	72.0674	$-4.84 \cdot 10^{-4}$
577	2	CMA-ES	5	2	25 550	413.04	72.0746	$1.60 \cdot 10^{-3}$
578	2	CMA-ES	5	3	20 426	323.86	72.0742	$7.71 \cdot 10^{-4}$
579	2	CMA-ES	5	4	33 302	506.59	72.0745	$1.19 \cdot 10^{-3}$
580	2	CMA-ES	5	5	48 722	792.41	72.0741	$1.84 \cdot 10^{-5}$
581	2	CMA-ES	6	1	43 118	686.30	72.0741	$4.98 \cdot 10^{-2}$
582	2	CMA-ES	6	2	46 958	776.14	72.0742	$5.80 \cdot 10^{-4}$
583	2	CMA-ES	6	3	45 962	749.69	72.0739	$-3.10 \cdot 10^{-6}$
584	2	CMA-ES	6	4	33 578	514.12	72.0740	$1.65 \cdot 10^{-3}$
585	2	CMA-ES	6	5	34 238	553.55	72.0742	$4.91 \cdot 10^{-2}$
586	2	CMA-ES	7	1	40 970	674.90	72.0739	$2.87 \cdot 10^{-5}$
587	2	CMA-ES	7	2	29 066	468.12	72.0743	$1.30 \cdot 10^{-3}$
588	2	CMA-ES	7	3	73 046	1219.17	72.0742	$4.77 \cdot 10^{-4}$
589	2	CMA-ES	7	4	23 510	403.55	72.0745	$4.83 \cdot 10^{-2}$
590	2	CMA-ES	7	5	19 238	338.64	72.0745	$4.89 \cdot 10^{-2}$
591	2	CMA-ES	8	1	48 962	778.97	72.0748	$6.08 \cdot 10^{-4}$
592	2	CMA-ES	8	2	55 994	934.60	72.0742	$1.48 \cdot 10^{-5}$
593	2	CMA-ES	8	3	45 134	759.24	72.0739	$6.98 \cdot 10^{-4}$
594	2	CMA-ES	8	4	30 950	506.58	72.0746	$1.35 \cdot 10^{-5}$
595	2	CMA-ES	8	5	49 394	824.01	72.0742	$3.59 \cdot 10^{-4}$
596	2	CMA-ES	9	1	42 914	687.28	72.0740	$9.08 \cdot 10^{-4}$
597	2	CMA-ES	9	2	44 702	660.21	72.0741	$8.23 \cdot 10^{-4}$
598	2	CMA-ES	9	3	24 038	536.23	70.2386	$1.30 \cdot 10^{-2}$
599	2	CMA-ES	9	4	31 418	496.53	72.0739	$7.89 \cdot 10^{-4}$
600	2	CMA-ES	9	5	31 490	514.71	72.0742	$8.04 \cdot 10^{-4}$
601	2	CMA-ES	10	1	36 818	588.84	72.0740	$6.52 \cdot 10^{-4}$
602	2	CMA-ES	10	2	33 218	532.65	72.0743	$4.91 \cdot 10^{-2}$
603	2	CMA-ES	10	3	50 774	839.86	72.0740	$4.09 \cdot 10^{-4}$
604	2	CMA-ES	10	4	12 242	247.58	72.0424	$-7.77 \cdot 10^{-5}$
605	2	CMA-ES	10	5	52 610	863.82	72.0740	$3.01 \cdot 10^{-4}$
606	2	GA	3	1	29 292	493.41	71.6696	$-7.67 \cdot 10^{-4}$
607	2	GA	3	2	117 488	1846.13	71.4486	$-1.80 \cdot 10^{-2}$
608	2	GA	3	3	53 175	1099.27	71.8243	$4.97 \cdot 10^{-2}$
609	2	GA	3	4	49 405	929.27	71.1987	$-3.32 \cdot 10^{-2}$
610	2	GA	3	5	49 588	1046.73	71.8690	$-1.32 \cdot 10^{-2}$
611	3	fmincon(v)	1	1	659	7.80	69.3158	$6.78 \cdot 10^{-2}$
612	3	fmincon(v)	1	2	618	8.11	70.3489	$2.69 \cdot 10^{-1}$
613	3	fmincon(v)	1	3	717	9.43	68.1308	$6.27 \cdot 10^{-3}$
614	3	fmincon(v)	1	4	728	10.06	70.1716	$3.37 \cdot 10^{-2}$
615	3	fmincon(v)	1	5	349	3.48	59.8116	$1.47 \cdot 10^{-2}$
616	3	fmincon(v)	2	1	943	13.91	70.4975	$3.78 \cdot 10^{-2}$
617	3	fmincon(v)	2	2	1118	14.72	66.9264	8.03
618	3	fmincon(v)	2	3	1597	24.85	69.4052	$1.48 \cdot 10^{-3}$
619	3	fmincon(v)	2	4	936	12.77	69.9872	$1.44 \cdot 10^{-1}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
620	3	fmincon(v)	2	5	258	5.17	-	-
621	3	fmincon(v)	3	1	799	13.40	70.6952	$1.39 \cdot 10^1$
622	3	fmincon(v)	3	2	529	8.82	69.8865	$2.86 \cdot 10^1$
623	3	fmincon(v)	3	3	533	8.82	70.6817	$4.70 \cdot 10^{-2}$
624	3	fmincon(v)	3	4	457	7.63	70.0482	$6.03 \cdot 10^{-1}$
625	3	fmincon(v)	3	5	1267	21.60	70.4633	1.54
626	3	fmincon(v)	4	1	941	15.34	70.2505	$3.66 \cdot 10^{-3}$
627	3	fmincon(v)	4	2	1181	19.63	70.2805	$8.54 \cdot 10^{-3}$
628	3	fmincon(v)	4	3	464	7.35	70.2160	$2.21 \cdot 10^{-2}$
629	3	fmincon(v)	4	4	761	11.97	70.2227	$2.42 \cdot 10^{-2}$
630	3	fmincon(v)	4	5	435	6.58	70.1919	$7.47 \cdot 10^{-3}$
631	3	fmincon(v)	5	1	854	13.56	70.7835	$4.70 \cdot 10^{-3}$
632	3	fmincon(v)	5	2	1871	30.92	70.7892	$2.61 \cdot 10^{-2}$
633	3	fmincon(v)	5	3	943	13.34	70.4090	1.30
634	3	fmincon(v)	5	4	505	7.51	70.7543	$2.61 \cdot 10^{-2}$
635	3	fmincon(v)	5	5	483	7.07	70.6876	$1.52 \cdot 10^{-2}$
636	3	fmincon(v)	6	1	436	2.61	-	-
637	3	fmincon(v)	6	2	1826	28.46	70.2666	$-2.39 \cdot 10^{-4}$
638	3	fmincon(v)	6	3	290	5.07	-	-
639	3	fmincon(v)	6	4	669	8.45	67.9710	$1.09 \cdot 10^{-1}$
640	3	fmincon(v)	6	5	1877	26.43	70.7859	$5.73 \cdot 10^{-2}$
641	3	fmincon(v)	7	1	511	8.15	70.6883	$6.03 \cdot 10^{-3}$
642	3	fmincon(v)	7	2	410	7.18	70.4613	$2.77 \cdot 10^{-3}$
643	3	fmincon(v)	7	3	651	11.55	70.6564	$1.42 \cdot 10^{-2}$
644	3	fmincon(v)	7	4	352	5.63	70.6079	$8.79 \cdot 10^{-2}$
645	3	fmincon(v)	7	5	533	8.55	70.6714	$1.22 \cdot 10^{-2}$
646	3	fmincon(v)	8	1	974	14.90	70.8092	$3.65 \cdot 10^{-2}$
647	3	fmincon(v)	8	2	619	10.42	70.7539	5.60
648	3	fmincon(v)	8	3	694	11.52	70.7647	5.10
649	3	fmincon(v)	8	4	848	13.44	70.8101	$5.80 \cdot 10^{-1}$
650	3	fmincon(v)	8	5	528	8.47	70.7477	5.09
651	3	fmincon(v)	9	1	408	10.17	-	-
652	3	fmincon(v)	9	2	148	2.55	-	-
653	3	fmincon(v)	9	3	263	6.91	-	-
654	3	fmincon(v)	9	4	294	5.45	-	-
655	3	fmincon(v)	9	5	305	5.59	-	-
656	3	fmincon(v)	10	1	521	8.86	70.8047	$6.29 \cdot 10^{-4}$
657	3	fmincon(v)	10	2	432	7.12	70.7947	$6.78 \cdot 10^{-3}$
658	3	fmincon(v)	10	3	375	5.59	70.8031	$2.20 \cdot 10^{-2}$
659	3	fmincon(v)	10	4	297	4.57	70.7823	$1.17 \cdot 10^{-2}$
660	3	fmincon(v)	10	5	556	9.16	70.8038	$1.31 \cdot 10^{-5}$
661	3	fmincon(z)	1	1	2519	37.54	70.6373	$5.40 \cdot 10^{-2}$
662	3	fmincon(z)	1	2	853	10.70	70.5944	$6.75 \cdot 10^{-3}$
663	3	fmincon(z)	1	3	1222	16.99	70.5965	$8.35 \cdot 10^{-2}$
664	3	fmincon(z)	1	4	1311	17.63	70.5650	$2.05 \cdot 10^{-3}$
665	3	fmincon(z)	1	5	1084	12.45	70.5187	$3.87 \cdot 10^{-2}$
666	3	fmincon(z)	2	1	1054	14.87	70.8096	$1.54 \cdot 10^{-2}$
667	3	fmincon(z)	2	2	1079	15.41	70.8089	$1.01 \cdot 10^{-2}$
668	3	fmincon(z)	2	3	535	7.63	70.8077	$8.05 \cdot 10^{-1}$
669	3	fmincon(z)	2	4	592	8.61	70.8074	$7.96 \cdot 10^{-1}$
670	3	fmincon(z)	2	5	542	7.74	70.8076	$8.03 \cdot 10^{-1}$
671	3	fmincon(z)	3	1	2085	31.10	70.8091	$7.87 \cdot 10^{-5}$
672	3	fmincon(z)	3	2	1679	24.09	70.8103	$2.55 \cdot 10^{-2}$
673	3	fmincon(z)	3	3	1565	23.03	70.8094	$4.55 \cdot 10^{-2}$
674	3	fmincon(z)	3	4	1737	25.33	70.8094	$1.92 \cdot 10^{-3}$
675	3	fmincon(z)	3	5	2090	31.07	70.8093	$5.56 \cdot 10^{-4}$
676	3	fmincon(z)	4	1	968	14.91	70.8077	$2.66 \cdot 10^{-2}$
677	3	fmincon(z)	4	2	1081	16.51	70.8073	$3.54 \cdot 10^{-3}$
678	3	fmincon(z)	4	3	807	12.88	70.8006	$3.77 \cdot 10^{-3}$
679	3	fmincon(z)	4	4	2110	34.16	70.8082	$2.09 \cdot 10^{-3}$
680	3	fmincon(z)	4	5	928	14.51	70.8064	$5.88 \cdot 10^{-4}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
681	3	fmincon(z)	5	1	433	6.01	-	-
682	3	fmincon(z)	5	2	958	14.43	70.5627	$9.27 \cdot 10^{-3}$
683	3	fmincon(z)	5	3	1104	15.92	70.2084	$1.47 \cdot 10^{-5}$
684	3	fmincon(z)	5	4	898	12.76	70.2620	$1.02 \cdot 10^{-2}$
685	3	fmincon(z)	5	5	1367	22.04	70.3631	$3.37 \cdot 10^{-3}$
686	3	fmincon(z)	6	1	1818	29.07	70.8023	$2.68 \cdot 10^{-1}$
687	3	fmincon(z)	6	2	1200	19.27	70.8173	5.69
688	3	fmincon(z)	6	3	972	15.25	70.8173	6.39
689	3	fmincon(z)	6	4	1512	24.98	70.8231	8.12
690	3	fmincon(z)	6	5	1073	16.91	70.8173	6.36
691	3	fmincon(z)	7	1	933	14.44	70.8046	$3.67 \cdot 10^{-3}$
692	3	fmincon(z)	7	2	983	15.27	70.8047	$7.89 \cdot 10^{-3}$
693	3	fmincon(z)	7	3	1903	29.78	70.8042	$4.18 \cdot 10^{-4}$
694	3	fmincon(z)	7	4	1244	20.10	70.8016	$2.58 \cdot 10^{-3}$
695	3	fmincon(z)	7	5	1023	16.04	70.8040	$7.57 \cdot 10^{-2}$
696	3	fmincon(z)	8	1	3152	46.71	70.7989	$1.27 \cdot 10^{-4}$
697	3	fmincon(z)	8	2	4009	61.44	70.8045	$7.57 \cdot 10^{-2}$
698	3	fmincon(z)	8	3	2190	31.04	69.4076	$1.28 \cdot 10^{-3}$
699	3	fmincon(z)	8	4	4977	76.37	70.8071	$4.35 \cdot 10^{-3}$
700	3	fmincon(z)	8	5	3827	58.90	70.8080	$2.70 \cdot 10^{-2}$
701	3	fmincon(z)	9	1	325	5.52	-	-
702	3	fmincon(z)	9	2	325	5.49	-	-
703	3	fmincon(z)	9	3	223	3.95	-	-
704	3	fmincon(z)	9	4	324	5.42	-	-
705	3	fmincon(z)	9	5	222	3.92	-	-
706	3	fmincon(z)	10	1	785	11.71	70.8018	$-2.41 \cdot 10^{-6}$
707	3	fmincon(z)	10	2	788	11.63	70.8067	$8.81 \cdot 10^{-3}$
708	3	fmincon(z)	10	3	666	9.66	70.8067	$4.30 \cdot 10^{-2}$
709	3	fmincon(z)	10	4	833	12.26	70.8067	$1.02 \cdot 10^{-2}$
710	3	fmincon(z)	10	5	896	13.30	70.8073	$2.19 \cdot 10^{-2}$
711	3	IPOPT(v)	1	1	2384	35.32	70.6797	$-2.79 \cdot 10^{-2}$
712	3	IPOPT(v)	1	2	3530	53.11	70.6711	$-5.28 \cdot 10^{-3}$
713	3	IPOPT(v)	1	3	2162	31.62	70.7891	$-2.72 \cdot 10^{-2}$
714	3	IPOPT(v)	1	4	1734	25.15	70.7082	$-3.74 \cdot 10^{-2}$
715	3	IPOPT(v)	1	5	10283	165.03	70.7599	$-5.56 \cdot 10^{-2}$
716	3	IPOPT(v)	2	1	6488	101.53	70.7887	$-2.59 \cdot 10^{-2}$
717	3	IPOPT(v)	2	2	3167	47.33	70.8058	$-3.42 \cdot 10^{-3}$
718	3	IPOPT(v)	2	3	5237	77.93	70.8086	$7.52 \cdot 10^{-1}$
719	3	IPOPT(v)	2	4	2490	37.45	70.6371	$-4.77 \cdot 10^{-1}$
720	3	IPOPT(v)	2	5	5149	78.74	70.8075	3.23
721	3	IPOPT(v)	3	1	10663	172.65	70.7394	$-2.36 \cdot 10^{-1}$
722	3	IPOPT(v)	3	2	8694	136.92	70.7769	3.49
723	3	IPOPT(v)	3	3	4951	76.36	70.7652	$5.01 \cdot 10^1$
724	3	IPOPT(v)	3	4	5549	85.94	70.8036	$7.42 \cdot 10^{-1}$
725	3	IPOPT(v)	3	5	10477	169.09	70.7532	$-1.42 \cdot 10^{-1}$
726	3	IPOPT(v)	4	1	3326	49.37	70.8072	$-4.06 \cdot 10^{-4}$
727	3	IPOPT(v)	4	2	3094	44.91	70.8044	1.18
728	3	IPOPT(v)	4	3	3152	49.01	70.8042	$-1.10 \cdot 10^{-2}$
729	3	IPOPT(v)	4	4	1566	22.64	70.8042	$-4.51 \cdot 10^{-3}$
730	3	IPOPT(v)	4	5	3375	52.10	70.8068	$-2.12 \cdot 10^{-3}$
731	3	IPOPT(v)	5	1	1945	27.82	70.7663	$1.19 \cdot 10^{-2}$
732	3	IPOPT(v)	5	2	2579	37.35	70.8074	$-1.91 \cdot 10^{-4}$
733	3	IPOPT(v)	5	3	1398	19.02	70.8070	$-4.11 \cdot 10^{-4}$
734	3	IPOPT(v)	5	4	2239	32.22	70.7682	$-1.21 \cdot 10^{-1}$
735	3	IPOPT(v)	5	5	7367	114.02	70.6574	$-4.37 \cdot 10^{-1}$
736	3	IPOPT(v)	6	1	44	0.48	-	-
737	3	IPOPT(v)	6	2	44	0.46	-	-
738	3	IPOPT(v)	6	3	44	0.47	-	-
739	3	IPOPT(v)	6	4	44	0.47	-	-
740	3	IPOPT(v)	6	5	44	0.47	-	-
741	3	IPOPT(v)	7	1	10476	169.10	70.7298	$-2.13 \cdot 10^{-2}$
742	3	IPOPT(v)	7	2	6617	103.68	70.7963	$5.26 \cdot 10^{-2}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
743	3	IPOPT(v)	7	3	3700	55.80	70.8037	$-1.06 \cdot 10^{-2}$
744	3	IPOPT(v)	7	4	9135	143.98	70.7362	$-1.23 \cdot 10^{-1}$
745	3	IPOPT(v)	7	5	4467	67.48	70.8007	$-8.60 \cdot 10^{-3}$
746	3	IPOPT(v)	8	1	3961	60.47	70.7861	$-4.22 \cdot 10^{-2}$
747	3	IPOPT(v)	8	2	3836	57.99	70.7943	$-2.23 \cdot 10^{-2}$
748	3	IPOPT(v)	8	3	1727	26.16	70.5305	$-2.09 \cdot 10^{-1}$
749	3	IPOPT(v)	8	4	8288	131.15	70.8000	$-1.05 \cdot 10^{-2}$
750	3	IPOPT(v)	8	5	3689	56.64	70.7979	$-1.40 \cdot 10^{-2}$
751	3	IPOPT(v)	9	1	6044	93.76	70.7616	3.16
752	3	IPOPT(v)	9	2	6708	103.94	70.8074	$2.12 \cdot 10^{-2}$
753	3	IPOPT(v)	9	3	6657	104.93	70.6888	$-1.76 \cdot 10^{-1}$
754	3	IPOPT(v)	9	4	3598	55.76	70.7937	$-4.26 \cdot 10^{-2}$
755	3	IPOPT(v)	9	5	5520	85.76	70.8052	$8.85 \cdot 10^{-1}$
756	3	IPOPT(v)	10	1	6163	96.89	70.7549	$-8.23 \cdot 10^{-2}$
757	3	IPOPT(v)	10	2	5280	80.22	70.8029	$-1.25 \cdot 10^{-4}$
758	3	IPOPT(v)	10	3	3438	51.81	70.7776	$4.27 \cdot 10^{-2}$
759	3	IPOPT(v)	10	4	2523	37.84	70.7735	$-1.01 \cdot 10^{-1}$
760	3	IPOPT(v)	10	5	3308	50.69	70.7504	$-4.98 \cdot 10^{-3}$
761	3	IPOPT(z)	1	1	3039	41.35	70.8090	$9.42 \cdot 10^{-3}$
762	3	IPOPT(z)	1	2	4218	59.63	70.8090	$1.03 \cdot 10^{-2}$
763	3	IPOPT(z)	1	3	3085	41.98	70.8090	$1.23 \cdot 10^{-2}$
764	3	IPOPT(z)	1	4	3915	54.35	70.8090	$1.03 \cdot 10^{-2}$
765	3	IPOPT(z)	1	5	2086	27.32	70.8097	$8.32 \cdot 10^{-3}$
766	3	IPOPT(z)	2	1	2229	31.58	70.8096	$1.21 \cdot 10^{-2}$
767	3	IPOPT(z)	2	2	2503	35.70	70.8090	$8.92 \cdot 10^{-3}$
768	3	IPOPT(z)	2	3	4869	70.69	70.8090	$3.92 \cdot 10^{-2}$
769	3	IPOPT(z)	2	4	1571	21.78	70.8092	$7.73 \cdot 10^{-1}$
770	3	IPOPT(z)	2	5	2683	37.83	70.8090	$8.59 \cdot 10^{-3}$
771	3	IPOPT(z)	3	1	3758	54.31	70.8095	$8.96 \cdot 10^{-5}$
772	3	IPOPT(z)	3	2	2327	32.65	70.8090	$9.95 \cdot 10^{-3}$
773	3	IPOPT(z)	3	3	5393	78.56	70.8090	$6.55 \cdot 10^{-3}$
774	3	IPOPT(z)	3	4	2577	36.81	70.8088	$1.19 \cdot 10^{-1}$
775	3	IPOPT(z)	3	5	3164	44.74	70.8091	$4.19 \cdot 10^{-3}$
776	3	IPOPT(z)	4	1	2209	31.34	70.8095	$2.74 \cdot 10^{-2}$
777	3	IPOPT(z)	4	2	3068	44.42	70.8090	$1.20 \cdot 10^{-2}$
778	3	IPOPT(z)	4	3	1854	26.30	70.8096	$6.34 \cdot 10^{-2}$
779	3	IPOPT(z)	4	4	1935	27.14	70.8090	$1.43 \cdot 10^{-2}$
780	3	IPOPT(z)	4	5	2614	37.34	70.8096	$8.94 \cdot 10^{-3}$
781	3	IPOPT(z)	5	1	1148	16.27	70.8080	$-4.32 \cdot 10^{-3}$
782	3	IPOPT(z)	5	2	1813	26.07	70.8090	$2.05 \cdot 10^{-3}$
783	3	IPOPT(z)	5	3	1426	20.33	70.8085	$-6.80 \cdot 10^{-5}$
784	3	IPOPT(z)	5	4	1683	24.11	70.8085	$7.32 \cdot 10^{-2}$
785	3	IPOPT(z)	5	5	2021	28.84	70.8090	$1.02 \cdot 10^{-2}$
786	3	IPOPT(z)	6	1	1719	24.48	70.8095	$1.72 \cdot 10^{-1}$
787	3	IPOPT(z)	6	2	3758	53.82	70.8090	$1.74 \cdot 10^{-4}$
788	3	IPOPT(z)	6	3	1899	27.08	70.8096	$6.76 \cdot 10^{-3}$
789	3	IPOPT(z)	6	4	1840	26.39	70.8095	$6.81 \cdot 10^{-5}$
790	3	IPOPT(z)	6	5	3877	55.93	70.8090	$8.30 \cdot 10^{-3}$
791	3	IPOPT(z)	7	1	3515	50.04	70.8090	$4.24 \cdot 10^{-4}$
792	3	IPOPT(z)	7	2	3653	52.04	70.8091	$3.41 \cdot 10^{-3}$
793	3	IPOPT(z)	7	3	4022	57.79	70.8090	$2.93 \cdot 10^{-3}$
794	3	IPOPT(z)	7	4	2244	31.21	70.8091	$4.07 \cdot 10^{-2}$
795	3	IPOPT(z)	7	5	3647	51.72	70.8090	$1.00 \cdot 10^{-3}$
796	3	IPOPT(z)	8	1	1706	24.14	70.8097	$2.65 \cdot 10^{-1}$
797	3	IPOPT(z)	8	2	4849	70.94	70.8090	$1.21 \cdot 10^{-2}$
798	3	IPOPT(z)	8	3	4268	61.38	70.8090	$4.04 \cdot 10^{-3}$
799	3	IPOPT(z)	8	4	2289	32.77	70.8093	$2.98 \cdot 10^{-2}$
800	3	IPOPT(z)	8	5	2424	34.35	70.8102	$7.03 \cdot 10^{-4}$
801	3	IPOPT(z)	9	1	3401	48.33	70.8090	$1.09 \cdot 10^{-2}$
802	3	IPOPT(z)	9	2	1519	20.86	70.8093	$2.84 \cdot 10^{-3}$
803	3	IPOPT(z)	9	3	2736	38.48	70.8090	$6.81 \cdot 10^{-3}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)

Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
804	3	IPOPT(z)	9	4	3500	49.65	70.8090	$7.89 \cdot 10^{-3}$
805	3	IPOPT(z)	9	5	2007	28.02	70.8096	$1.12 \cdot 10^{-2}$
806	3	IPOPT(z)	10	1	1592	22.72	70.8093	$5.19 \cdot 10^{-3}$
807	3	IPOPT(z)	10	2	2412	34.64	70.8090	$1.19 \cdot 10^{-2}$
808	3	IPOPT(z)	10	3	4152	60.08	70.8090	$1.04 \cdot 10^{-2}$
809	3	IPOPT(z)	10	4	3276	47.10	70.8093	$1.22 \cdot 10^{-3}$
810	3	IPOPT(z)	10	5	3961	58.93	70.8093	$1.05 \cdot 10^{-2}$
811	3	COBYLA	1	1	2303	40.74	69.9549	$-3.04 \cdot 10^{-4}$
812	3	COBYLA	1	2	1244	29.84	70.4161	$5.56 \cdot 10^{-2}$
813	3	COBYLA	1	3	2214	46.60	70.2145	$4.19 \cdot 10^{-2}$
814	3	COBYLA	1	4	1558	29.31	70.0839	$5.06 \cdot 10^{-2}$
815	3	COBYLA	1	5	1328	25.29	69.9273	$5.37 \cdot 10^{-2}$
816	3	COBYLA	2	1	1181	23.09	69.9491	$4.09 \cdot 10^{-2}$
817	3	COBYLA	2	2	824	21.65	70.6268	$5.34 \cdot 10^{-2}$
818	3	COBYLA	2	3	1152	24.07	70.5596	$2.57 \cdot 10^{-2}$
819	3	COBYLA	2	4	1213	27.29	70.4653	$3.75 \cdot 10^{-4}$
820	3	COBYLA	2	5	1383	26.13	70.1488	$4.37 \cdot 10^{-2}$
821	3	COBYLA	3	1	1554	41.79	70.8054	$2.85 \cdot 10^{-4}$
822	3	COBYLA	3	2	1593	40.48	70.8033	$1.00 \cdot 10^{-1}$
823	3	COBYLA	3	3	1403	33.35	70.5955	$4.87 \cdot 10^{-3}$
824	3	COBYLA	3	4	1047	26.34	70.7855	$5.87 \cdot 10^{-2}$
825	3	COBYLA	3	5	1441	37.39	70.8030	$5.79 \cdot 10^{-4}$
826	3	COBYLA	4	1	1482	32.30	70.7098	$6.96 \cdot 10^{-2}$
827	3	COBYLA	4	2	1008	21.10	69.2230	$7.94 \cdot 10^{-4}$
828	3	COBYLA	4	3	781	17.33	69.2042	$6.67 \cdot 10^{-4}$
829	3	COBYLA	4	4	810	17.94	69.1179	$1.37 \cdot 10^{-4}$
830	3	COBYLA	4	5	1296	26.46	69.2552	$2.35 \cdot 10^{-2}$
831	3	COBYLA	5	1	1173	29.47	70.8041	$1.04 \cdot 10^{-1}$
832	3	COBYLA	5	2	1356	34.56	70.7977	$4.37 \cdot 10^{-2}$
833	3	COBYLA	5	3	1092	26.46	70.8020	$4.94 \cdot 10^{-2}$
834	3	COBYLA	5	4	1209	31.00	70.8066	$3.28 \cdot 10^{-2}$
835	3	COBYLA	5	5	1201	29.60	70.8036	$3.93 \cdot 10^{-2}$
836	3	COBYLA	6	1	1380	44.48	-	-
837	3	COBYLA	6	2	1191	43.48	-	-
838	3	COBYLA	6	3	1112	23.14	69.0313	$2.02 \cdot 10^{-4}$
839	3	COBYLA	6	4	1424	30.87	70.4738	$4.88 \cdot 10^{-2}$
840	3	COBYLA	6	5	2092	50.76	70.6783	$4.27 \cdot 10^{-2}$
841	3	COBYLA	7	1	782	13.81	-	-
842	3	COBYLA	7	2	478	10.02	-	-
843	3	COBYLA	7	3	527	10.20	-	-
844	3	COBYLA	7	4	532	10.65	-	-
845	3	COBYLA	7	5	419	8.60	-	-
846	3	COBYLA	8	1	1261	30.99	70.8101	$3.87 \cdot 10^{-2}$
847	3	COBYLA	8	2	1963	49.19	70.8102	$1.63 \cdot 10^{-4}$
848	3	COBYLA	8	3	1556	38.01	70.8060	$2.28 \cdot 10^{-2}$
849	3	COBYLA	8	4	1582	39.15	70.8086	$1.84 \cdot 10^{-2}$
850*	3	COBYLA	8	5	1415	35.51	70.8104	$4.27 \cdot 10^{-2}$
851	3	COBYLA	9	1	721	13.96	70.2591	$2.42 \cdot 10^{-2}$
852	3	COBYLA	9	2	2581	42.39	70.1652	$3.64 \cdot 10^{-2}$
853	3	COBYLA	9	3	1082	16.03	69.3437	$5.03 \cdot 10^{-2}$
854	3	COBYLA	9	4	681	11.35	68.7210	$-3.38 \cdot 10^{-5}$
855	3	COBYLA	9	5	717	11.83	69.2242	$3.68 \cdot 10^{-3}$
856	3	COBYLA	10	1	3043	70.32	70.6981	$5.69 \cdot 10^{-4}$
857	3	COBYLA	10	2	1858	45.74	70.6566	$4.19 \cdot 10^{-5}$
858	3	COBYLA	10	3	3135	77.12	70.7545	$1.28 \cdot 10^{-3}$
859	3	COBYLA	10	4	1688	38.87	70.4190	$2.11 \cdot 10^{-3}$
860	3	COBYLA	10	5	1556	33.86	70.3778	$1.54 \cdot 10^{-2}$
861	3	CMA-ES	1	1	106 771	2213.89	70.8062	$3.79 \cdot 10^{-2}$
862	3	CMA-ES	1	2	39 314	913.77	70.7905	$-4.02 \cdot 10^{-6}$
863	3	CMA-ES	1	3	43 084	959.69	70.7822	$-7.58 \cdot 10^{-6}$
864	3	CMA-ES	1	4	56 305	1289.27	70.7964	$-6.54 \cdot 10^{-5}$
865	3	CMA-ES	1	5	15 264	350.21	70.7641	$1.56 \cdot 10^{-5}$
866	3	CMA-ES	2	1	14 029	343.95	70.7529	$-7.20 \cdot 10^{-5}$
867	3	CMA-ES	2	2	117 275	2352.85	70.8067	$8.16 \cdot 10^{-6}$
868	3	CMA-ES	2	3	33 256	822.68	70.8085	$4.49 \cdot 10^{-6}$
869	3	CMA-ES	2	4	81 200	1718.66	70.8017	$-3.20 \cdot 10^{-7}$
870	3	CMA-ES	2	5	26 210	613.04	70.7738	$-1.73 \cdot 10^{-5}$
871	3	CMA-ES	3	1	76 546	1681.22	70.8055	$-5.13 \cdot 10^{-7}$
872	3	CMA-ES	3	2	37 208	855.14	70.7835	$-5.28 \cdot 10^{-5}$
873	3	CMA-ES	3	3	52 964	1272.98	70.8092	$3.87 \cdot 10^{-2}$

(auf nächster Seite fortgesetzt)



Tabelle A.1: (fortgesetzt)

Nr.	DS	Programm	SP	Wdh.	Aufrufe $n_{\text{Sim}}$	Zeit $t$ in min	$\eta_{\text{KG}}$	max. NB
874	3	CMA-ES	3	4	20 971	509.55	70.7879	$-3.20 \cdot 10^{-5}$
875	3	CMA-ES	3	5	49 116	1041.61	70.7996	$1.55 \cdot 10^{-5}$
876	3	CMA-ES	4	1	18 969	449.42	70.7654	$-3.34 \cdot 10^{-5}$
877	3	CMA-ES	4	2	29 759	707.08	70.7517	$1.71 \cdot 10^{-4}$
878	3	CMA-ES	4	3	22 219	537.10	70.7916	$-7.62 \cdot 10^{-5}$
879	3	CMA-ES	4	4	20 854	487.19	70.7656	$-4.77 \cdot 10^{-5}$
880	3	CMA-ES	4	5	29 759	666.63	70.7939	$5.03 \cdot 10^{-5}$
881	3	CMA-ES	5	1	19 658	478.39	70.7883	$-8.41 \cdot 10^{-5}$
882	3	CMA-ES	5	2	39 964	906.62	70.8055	$-4.13 \cdot 10^{-5}$
883	3	CMA-ES	5	3	126 752	2597.97	70.7915	$8.36 \cdot 10^{-6}$
884	3	CMA-ES	5	4	22 167	570.46	70.7918	$-4.01 \cdot 10^{-5}$
885	3	CMA-ES	5	5	16 759	402.61	70.7834	$-1.69 \cdot 10^{-5}$
886	3	CMA-ES	6	1	54 329	1159.89	70.8014	$3.88 \cdot 10^{-2}$
887	3	CMA-ES	6	2	23 506	558.71	70.7913	$-1.95 \cdot 10^{-3}$
888	3	CMA-ES	6	3	30 812	722.86	70.7922	$-8.75 \cdot 10^{-6}$
889	3	CMA-ES	6	4	28 888	655.30	70.7335	$1.18 \cdot 10^{-4}$
890	3	CMA-ES	6	5	32 944	772.05	70.8004	$-9.58 \cdot 10^{-7}$
891	3	CMA-ES	7	1	36 220	845.85	70.7989	$-3.75 \cdot 10^{-5}$
892	3	CMA-ES	7	2	25 456	626.49	70.7663	$-1.87 \cdot 10^{-5}$
893	3	CMA-ES	7	3	35 141	872.13	70.7843	$-5.96 \cdot 10^{-5}$
894	3	CMA-ES	7	4	39 964	943.95	70.7957	$-1.59 \cdot 10^{-5}$
895	3	CMA-ES	7	5	45 827	1064.62	70.7992	$-1.28 \cdot 10^{-5}$
896	3	CMA-ES	8	1	26 587	646.19	70.7933	$-8.84 \cdot 10^{-6}$
897	3	CMA-ES	8	2	49 857	1091.28	70.7822	$2.54 \cdot 10^{-5}$
898	3	CMA-ES	8	3	24 377	604.34	70.7797	$-3.02 \cdot 10^{-5}$
899	3	CMA-ES	8	4	29 083	655.06	70.7732	$3.58 \cdot 10^{-6}$
900	3	CMA-ES	8	5	26 938	629.60	70.7877	$2.15 \cdot 10^{-6}$
901	3	CMA-ES	9	1	28 017	691.29	70.7939	$-3.06 \cdot 10^{-5}$
902	3	CMA-ES	9	2	23 220	565.37	70.7524	$-3.58 \cdot 10^{-6}$
903	3	CMA-ES	9	3	35 154	852.80	70.7796	$-5.19 \cdot 10^{-7}$
904	3	CMA-ES	9	4	28 589	669.08	70.7968	$6.24 \cdot 10^{-6}$
905	3	CMA-ES	9	5	38 963	912.92	70.7857	$2.71 \cdot 10^{-6}$
906	3	CMA-ES	10	1	42 421	957.16	70.7929	$1.60 \cdot 10^{-4}$
907	3	CMA-ES	10	2	36 870	882.21	70.8015	$-3.61 \cdot 10^{-7}$
908	3	CMA-ES	10	3	37 845	963.02	70.7909	$3.40 \cdot 10^{-6}$
909	3	CMA-ES	10	4	18 800	471.08	70.7756	$-3.52 \cdot 10^{-5}$
910	3	CMA-ES	10	5	23 844	616.89	70.7396	$6.78 \cdot 10^{-6}$
911	3	GA	3	1	47 721	1195.56	70.0182	$9.82 \cdot 10^{-4}$
912	3	GA	3	2	40 323	778.52	69.9113	$-3.00 \cdot 10^{-2}$
913	3	GA	3	3	32 958	730.34	69.9056	$-3.03 \cdot 10^{-3}$
914	3	GA	3	4	53 015	935.10	69.1285	$-8.22 \cdot 10^{-3}$
915	3	GA	3	5	83 222	1708.82	69.6415	$2.78 \cdot 10^{-3}$



# Literatur

ALABDULKAREM et al. 2011

ALABDULKAREM, A., MORTAZAVI, A., HWANG, Y., RADERMACHER, R. & ROGERS, P.: Optimization of propane pre-cooled mixed refrigerant LNG plant. *Applied Thermal Engineering* 31 (2011), S. 1091–1098. DOI: 10.1016/j.applthermaleng.2010.12.003.

ÁLVAREZ et al. 2011

ÁLVAREZ, V., MATTEDI, S., IGLESIAS, M., GONZALEZ-OLMOS, R. & RESA, J.: Phase equilibria of binary mixtures containing methyl acetate, water, methanol or ethanol at 101.3 kPa. *Physics and Chemistry of Liquids* 49.1 (2011), S. 52–71. DOI: 10.1080/00319100903012403.

APPL 1997

APPL, M.: Ammonia. Methanol. Hydrogen. Carbon Monoxide. Modern Production Technologies. *Nitrogen - The Journal of the World Nitrogen and Methanol Industries* (1997).

ARETIN et al. 2015

ARETIN, T. von, SCHALLMOSER, S., STANDL, S., TONIGOLD, M., LERCHER, J. A. & HINRICHSSEN, O.: Single-Event Kinetic Model for 1-Pentene Cracking on ZSM-5. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 54.47 (2015), S. 11792–11803. DOI: 10.1021/acs.iecr.5b02629.

ASPELUND et al. 2010

ASPELUND, A., GUNDERSEN, T., MYKLEBUST, J., NOWAK, M. & TOMASGARD, A.: An optimization-simulation model for a simple LNG process. *Computers and Chemical Engineering* 34 (2010), S. 1606–1617. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2009.10.018.

AUDET & DENNIS, JR. 2006

AUDET, C. & DENNIS, JR., J.: Mesh adaptive direct search algorithms for constrained optimization. *SIAM Journal on optimization* 17.1 (2006), S. 188–217.

BIEDERMANN et al. 2006

BIEDERMANN, P., GRUBE, T. & HÖHLEIN, B.: *Methanol as an Energy Carrier. Schriften des Forschungszentrums Jülich*. Bd. 55. Forschungszentrum Jülich GmbH, 2006.

BIEGLER 2010

BIEGLER, L. T.: *Nonlinear Programming*. SIAM, 2010.

BIEGLER 2014

BIEGLER, L.: Recent Advances in Chemical Process Optimization. *Chemie Ingenieur Technik* 86.7 (2014), S. 943–952. DOI: 10.1002/cite.201400033.

BIEGLER & GROSSMANN 2004

BIEGLER, L. & GROSSMANN, I.: Retrospective on optimization. *Computers and Chemical Engineering* 28 (2004), S. 1169–1192.

BIEGLER et al. 1997

BIEGLER, L., GROSSMANN, I. & WESTERBERG, A.: *Systematic Methods of Chemical Process Design*. Prentice-Hall PTR, 1997.

BLUMBERG et al. 2017

BLUMBERG, T., MOROSUK, T. & TSATSARONIS, G.: A Comparative Exergoeconomic Evaluation of the Synthesis Routes for Methanol Production from Natural Gas. *Applied Sciences* 7.12 (2017), S. 1213. DOI: 10.3390/app7121213.

BUDE & REPKE 2015

BUDE, D. & REPKE, J.-U.: Einsatzpotenzial von Trennwandkolonnen bei der heterogenen Azeotrop-Rektifikation. *Chemie Ingenieur Technik* 87.8 (2015), S. 1069. DOI: 10.1002/cite.201550067.

BURGER 2012

BURGER, R.: *Cooling Tower Technology*. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Electronic Release*. Wiley-VCH, Weinheim, 2012.

CABALLERO et al. 2007

CABALLERO, J. A., ODJO, A. & GROSSMANN, I. E.: Flowsheet Optimization with Complex Cost and Size Functions Using Process Simulators. *AIChE Journal* 53.9 (2007), S. 2351–2366. DOI: 10.1002/aic.11262.

CAO et al. 2017

CAO, Y., FLORES-CERRILLO, J. & SWARTZ, C.: Practical optimization for cost reduction of a liquefier in an industrial air separation plant. *Computers & Chemical Engineering* 99 (2017), S. 13–20. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2016.12.011.

CARDELLA et al. 2017

CARDELLA, U., DECKER, L., SUNDBERG, J. & KLEIN, H.: Process optimization for large-scale hydrogen liquefaction. *International Journal of Hydrogen Energy* 42.17 (2017), S. 12339–12354. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2017.03.167.

CHOI & KELLEY 2000

CHOI, T. D. & KELLEY, C. T.: Superlinear Convergence and Implicit Filtering. *SIAM Journal on Optimization* 10.4 (2000), S. 1149–1162. DOI: 10.1137/s1052623499354096.

CONN et al. 2009

CONN, A. R., SCHEINBERG, K. & VINCENTE, L. N.: *Introduction to Derivative-Free Optimization*. SIAM, 2009.

CURRIE & WILSON 2012

CURRIE, J. & WILSON, D. I.: *OPTI: Lowering the barrier between open source optimizers and the industrial MATLAB user. Foundations of Computer-Aided Process Operations*. Hrsg. von N. SAHIDINIS & J. PINTO. Savannah, Georgia, USA, 2012.

DAHDAH & MITSOS 2014

DAHDAH, T. H. & MITSOS, A.: Structural optimization of seawater desalination: II novel MED–MSF–TVC configurations. *Desalination* 344 (2014), S. 219–227. DOI: 10.1016/j.desal.2014.03.026.

DEB 2000

DEB, K.: An efficient constraint handling method for genetic algorithms. *Computer methods in applied mechanics and engineering* 186 (2000), S. 311–339. DOI: 10.1016/s0045-7825(99)00389-8.

DEB et al. 2002

DEB, K., PRATAP, A., AGARWAL, S. & MEYARIVAN, T.: A Fast and Elitist Multiobjective Genetic Algorithm: NSGA-II. *IEEE Transactions on Evolutionary Computation* 6.2 (2002), S. 182–197. DOI: 10.1109/4235.996017.

DEL NOGAL et al. 2008

DEL NOGAL, F., KIM, J.-K., PERRY, S. & SMITH, R.: Optimal design of mixed refrigerant cycles. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 47 (2008), S. 8724–8740. DOI: 10.1021/ie800515u.

EDGAR et al. 2001

EDGAR, T. F., HIMMELBLAU, D. M. & LASDON, L. S.: *Optimization of Chemical Processes*. McGraw-Hill, 2001.

EFFENBERGER 2000

EFFENBERGER, H.: *Dampferzeugung*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2000.

ERNST 2014

ERNST, P. S.: Entwicklung und Anwendung eines innovativen Werkzeugs für die mehrkriterielle Optimierung verfahrenstechnischer Prozesse. Dissertation. TU Hamburg-Harburg, 2014.

GILL et al. 1981

GILL, P. E., MURRAY, W. & WRIGHT, M. H.: *Practical Optimization*. Academic Press Inc., London, 1981.

GILL et al. 1983

GILL, P. E., MURRAY, W., SAUNDERS, M. A. & WRIGHT, M. H.: Computing Forward-Difference Intervals for Numerical Optimization. *SIAM Journal on Scientific and Statistical Computing* 4.2 (1983), S. 310–321. DOI: 10.1137/0904025.

GROSSMANN & BIEGLER 2004

GROSSMANN, I. & BIEGLER, L.: Part II. Future perspective on optimization. *Computers and Chemical Engineering* 28 (2004), S. 1193–1218.

HAAF & HENRICI 2012

HAAF, S. & HENRICI, H.: *Refrigeration Technology*. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Electronic Release*. Wiley-VCH, Weinheim, 2012.

HAIMES et al. 1971

HAIMES, Y. Y., LASDON, L. S. & WISMER, D. A.: On a Bicriterion Formulation of the Problems of Integrated System Identification and System Optimization. *IEEE Transactions on Systems, Man, and Cybernetics* 3 (1971), S. 296–297. DOI: 10.1109/tsmc.1971.4308298.

HANSEN & KERN 2004

HANSEN, N. & KERN, S.: *Evaluating the CMA Evolution Strategy on Multimodal Test Functions*. *Eighth International Conference on Parallel Problem Solving from Nature PPSN VIII, Proceedings*. Hrsg. von X. YAO, E. K. BURKE, J. A. LOZANO, J. SMITH, J. J. MERELO-GUERVÓS, J. A. BULLINARIA, J. E. ROWE, P. TIÑO, A. KABÁN & H.-P. SCHWEFEL. Springer Berlin Heidelberg, 2004, S. 282–291. DOI: 10.1007/978-3-540-30217-9\_29.

HANSEN & OSTERMEIER 2001

HANSEN, N. & OSTERMEIER, A.: Completely Derandomized Self-Adaptation in Evolution Strategies. *Evolutionary Computation* 9.2 (2001). DOI: 10.1162/106365601750190398.

HÄUSSINGER et al. 2012a

HÄUSSINGER, P., LOHMÜLLER, R. & WATSON, A.: *Hydrogen, 2. Production*. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Electronic Release*. Wiley-VCH, Weinheim, 2012. DOI: 10.1002/14356007.o13\_o03.

HÄUSSINGER et al. 2012b

HÄUSSINGER, P., LOHMÜLLER, R. & WATSON, A.: *Hydrogen, 3. Purification. Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Electronic Release*. Wiley-VCH, Weinheim, 2012.

HOHMANN 1996

HOHMANN, F.: Petrochemical developments: Improve steam reformer performance. *Hydrocarbon processing* 75.3 (1996), S. 71–74.

HOLDERBAUM & GMEHLING 1991

HOLDERBAUM, T. & GMEHLING, J.: PSRK: A Group Contribution Equation of State Based on UNIFAC. *Fluid Phase Equilibria* 70.2-3 (1991), S. 251–265.

HOLLAND & DE BRUYN 1996

HOLLAND, M. L. & DE BRUYN, H. J.: Metal dusting failures in methane reforming plant. *International Journal of Pressure Vessels and Piping* 66.1-3 (1996), S. 125–133. DOI: 10.1016/0308-0161(95)00089-5.

JANUS et al. 2017

JANUS, T., FOUSSETTE, C., URSELMANN, M., TLATLIK, S., GOTTSCHALK, A., EMMERICH, M., BÄCK, T. & ENGELL, S.: Optimierungsbasierte Prozesssynthese auf Basis eines kommerziellen Flowsheet-Simulators. *Chemie Ingenieur Technik* 89.5 (2017), S. 655–664. DOI: 10.1002/cite.201600179.

JOHNSON o.D.

JOHNSON, S. G.: *The NLOpt nonlinear-optimization package*. URL: <http://ab-initio.mit.edu/nlopt>.

KARUPPIAH et al. 2008

KARUPPIAH, R., PESCHEL, A. & GROSSMANN, I. E.: Energy Optimization for the Design of Corn-Based Ethanol Plants. *AIChE Journal* 54.6 (2008), S. 1499–1525. DOI: 10.1002/aic.11480.

KHAN et al. 2016

KHAN, M. S., KARIMI, I. A. & LEE, M.: Evolution and optimization of the dual mixed refrigerant process of natural gas liquefaction. *Applied Thermal Engineering* 96 (2016), S. 320–329. DOI: 10.1016/j.applthermaleng.2015.11.092.

KHAN & LEE 2013

KHAN, M. S. & LEE, M.: Design optimization of single mixed refrigerant natural gas liquefaction process using the particle swarm paradigm with nonlinear constraints. *Energy* 49 (2013), S. 146–155. DOI: 10.1016/j.energy.2012.11.028.

KHAN et al. 2012

KHAN, M. S., LEE, S. & LEE, M.: Optimization of single mixed refrigerant natural gas liquefaction plant with nonlinear programming. *Asia-Pacific Journal of Chemical Engineering* 7 (2012), S. 62–70. DOI: 10.1002/apj.642.

KÖNIG & GÖHNA 2000

KÖNIG, P. & GÖHNA, H.: »Verfahren zum Erzeugen von Methanol«. EP 0 790 226. 2000.

KRAFT 1988

KRAFT, D.: *A Software Package for Sequential Quadratic Programming*. Wissenschaftliches Berichtswesen der DFVLR, 1988.

KURNATOWSKI et al. 2017

KURNATOWSKI, M. von, BORTZ, M., SCHERRER, A., HOFFMANN, A., LORENZ, H.-M., CARAUCAN, M., GRÜTZNER, T., KÜNZLE, N. & KÜFER, K.-H.: Multi-criteria Optimization of an Industrial World-Scale Process. *Chemie Ingenieur Technik* 89.11 (2017), S. 1471–1478. DOI: 10.1002/cite.201700016.

LAWSON & HANSON 1974

LAWSON, C. L. & HANSON, R. J.: *Solving least squares problems*. Prentice-Hall, 1974.

LE DIGABEL 2011

LE DIGABEL, S.: Algorithm 909: NOMAD: Nonlinear Optimization with the MADS Algorithm. *ACM Transactions on Mathematical Software* 37.4 (2011), S. 44.

LIPTÁK 1987

LIPTÁK, B. G.: *Optimization of Unit Operations*. Chilton Book Company, Radnor, Pennsylvania, 1987.

LURGI OEL GAS CHEMIE GMBH o.D.(a)

LURGI OEL GAS CHEMIE GMBH: *Integrated Low Pressure Methanol Process, Synthesis Gas Production by Combined Reforming of Natural Gas or Oil Associated Gas*. Broschüre.

LURGI OEL GAS CHEMIE GMBH o.D.(b)

LURGI OEL GAS CHEMIE GMBH: *Integrated Low Pressure Methanol Process, Synthesis Gas Production by Conventional Steam Reforming of Natural Gas or Oil Associated Gas*. Broschüre.

MCKAY et al. 1979

MCKAY, M. D., BECKMAN, R. & CONOVER, W.: A Comparison of Three Methods for Selecting Values of Input Variables in the Analysis of Output from a Computer Code. *Technometrics* 21.2 (1979), S. 239–245. DOI: 10.2307/1268522.



MOEIN et al. 2015

MOEIN, P., SARMA, M., EBRAHIMI, H., ZARE, M., PAKSERESHT, S. & VAKILI, S. Z.: APCI- LNG single mixed refrigerant process for natural gas liquefaction cycle: Analysis and optimization. *Journal of Natural Gas Science and Engineering* 26 (2015), S. 470–479. DOI: 10.1016/j.jngse.2015.06.040.

MÜLLER & BORMANN 2011

MÜLLER, D. & BORMANN, A.: »PROCESS AND PLANT FOR PRODUCING METHANOL«. 20110065966. 2011.

NAVARRO-AMORÓS et al. 2014

NAVARRO-AMORÓS, M. A., RUIZ-FEMENIA, R. & CABALLERO, J. A.: Integration of modular process simulators under the Generalized Disjunctive Programming framework for the structural flowsheet optimization. *Computers and Chemical Engineering* 67 (2014), S. 13–25. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2014.03.014.

NELDER & MEAD 1965

NELDER, J. A. & MEAD, R.: A Simplex Method for Function Minimization. *The Computer Journal* 7.4 (1965), S. 308–313. DOI: 10.1093/comjnl/7.4.308.

NOCEDAL & WRIGHT 2006

NOCEDAL, J. & WRIGHT, S. J.: *Numerical Optimization*. 2. Auflage. Springer Series in Operations Research and Financial Engineering. Springer Science + Business Media, New York, 2006. DOI: 10.1007/978-0-387-40065-5.

OCHOA et al. 2010

OCHOA, S., WOZNY, G. & REPKE, J.-U.: A new algorithm for global optimization: Molecular-Inspired Parallel Tempering. *Computers and Chemical Engineering* 34 (2010), S. 2072–2084. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2010.06.018.

OH et al. 2016

OH, S., BINNS, M., CHO, H. & KIM, J.: Energy minimization of MEA-based CO<sub>2</sub> capture process. *Applied Energy* 169 (2016), S. 353–362. DOI: 10.1016/j.apenergy.2016.02.046.

OTT et al. 2012

OTT, J., GRONEMANN, V., PONTZEN, F., FIEDLER, E., GROSSMANN, G., KERSEBOHM, D., WEISS, G. & WITTE, C.: *Methanol. Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Electronic Release*. Wiley-VCH, Weinheim, 2012. DOI: 10.1002/14356007.a16\_465.pub2.

OTTE et al. 2016

OTTE, D., LORENZ, H.-M. & REPKE, J.-U.: A toolbox using the stochastic optimization algorithm MIPT and ChemCAD for the systematic process retrofit of complex chemical processes. *Computers and Chemical Engineering* 84 (2016), S. 371–381. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2015.08.023.

POWELL 1994

POWELL, M. J. D.: *A direct search optimization method that models the objective and constraint functions by linear interpolation. Advances in optimization and numerical analysis: proceedings of the Sixth Workshop on Optimization and Numerical Analysis.* Hrsg. von S. GOMEZ & J.-P. HENNART. Bd. 275. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, NL, 1994, S. 51–67. DOI: 10.1007/978-94-015-8330-5\_4.

POWELL 1998

POWELL, M. J. D.: Direct search algorithm for optimization calculations. *Acta Numerica* 7 (1998), S. 287–336. DOI: 10.1017/s0962492900002841.

POWELL 1978

POWELL, M.: *A fast algorithm for nonlinearly constrained optimization calculations. Numerical Analysis, Lecture Notes in Mathematics.* Hrsg. von G. WATSON. Bd. 630. Springer Berlin Heidelberg, 1978.

RAMAN & GROSSMANN 1994

RAMAN, R. & GROSSMANN, I. E.: Modelling and computational techniques for logic based integer programming. *Computers and Chemical Engineering* 18.7 (1994), S. 563–578. DOI: 10.1016/0098-1354(93)e0010-7.

REIMERT et al. 2012

REIMERT, R., MARSCHNER, F., RENNER, H.-J., BOLL, W., SUPP, E., BREJC, M., LIEBNER, W. & SCHAUB, G.: *Gas Production, 2. Processes. Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Electronic Release.* Wiley-VCH, Weinheim, 2012. DOI: 10.1002/14356007.o12\_o01.

RIOS & SAHIDINIS 2012

RIOS, L. M. & SAHIDINIS, N. V.: Derivative-free optimization: a review of algorithms and comparison of software implementations. *Journal of Global Optimization* 56.3 (2012), S. 1247–1293. DOI: 10.1007/s10898-012-9951-y.

SCHITTKOWSKI 1981

SCHITTKOWSKI, K.: The nonlinear programming method of Wilson, Han and Powell. Part 2: An efficient implementation with linear least squares subproblems. *Numerische Mathematik* 38.1 (1981), S. 115–127.

SCHLUETER 2012

SCHLUETER, M.: Nonlinear Mixed Integer based Optimization Technique for Space Applications. Ph.D. Thesis. University of Birmingham, UK, 2012.

SEIDER et al. 1999

SEIDER, W., SEADER, J. & LEWIN, D.: *Process design principles: synthesis, analysis, and evaluation*. John Wiley & Sons, 1999.

SIGLOCH 2009

SIGLOCH, H.: *Strömungsmaschinen*. Hanser, 2009. DOI: 10.3139/9783446436589.

STRAUSS 2009

STRAUSS, K.: *Kraftwerkstechnik*. 6. Aufl. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2009. DOI: 10.1007/978-3-642-01431-4.

SUNDBERG et al. 2017

SUNDBERG, J., REHFELDT, S., PESCHEL, A. & KLEIN, H.: Prozessoptimierung am Beispiel der Methanolsynthese mithilfe verschiedener lokaler Optimierungsalgorithmen. *Chemie Ingenieur Technik* 89.5 (2017), S. 675–685. DOI: 10.1002/cite.201600108.

SUNDBERG et al. 2018

SUNDBERG, J., STANDL, S., ARETIN, T. von, TONIGOLD, M., REHFELDT, S., HINRICHSSEN, O. & KLEIN, H.: Optimal process for catalytic cracking of higher olefins on ZSM-5. *Chemical Engineering Journal* 348 (2018), S. 84–94. DOI: 10.1016/j.cej.2018.04.060.

SUPP & HILSEBEIN 1985

SUPP, E. & HILSEBEIN, W.: Improvements and Developments of the Lurgi Methanol Process. *Chemical Economy & Engineering Review* 17.5 (1985), S. 18–22.

ULBRICH & ULBRICH 2012

ULBRICH, M. & ULBRICH, S.: *Nichtlineare Optimierung*. Springer Basel AG, 2012. DOI: 10.1007/978-3-0346-0654-7.

URSELMANN et al. 2011

URSELMANN, M., BARKMANN, S., SAND, G. & ENGELL, S.: Optimization-based design of reactive distillation columns using a memetic algorithm. *Computers & Chemical Engineering* 35 (2011), S. 787–805. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2011.01.038.

URSELMANN et al. 2015

URSELMANN, M., ENGELL, S., FOUSSETTE, C., BÄCK, T., JANUS, T., TLATLIK, S., GOTTSCHALK, A. & EMMERICH, M.: Designoptimierung thermischer Trennverfahren mit memetischen Algorithmen und Aspen Plus Prozessmodellen. *Chemie Ingenieur Technik* 87.8 (2015), S. 1060. DOI: 10.1002/cite.201550074.

WÄCHTER & BIEGLER 2006

WÄCHTER, A. & BIEGLER, L. T.: On the implementation of an interior-point line-search algorithm for large-scale nonlinear programming. *Mathematical Programming* 106.1 (2006), S. 25–57. DOI: 10.1007/s10107-004-0559-y.

WAHL et al. 2013

WAHL, P. E., LØVSETH, S. W. & MØLNVIK, M. J.: Optimization of a simple LNG process using sequential quadratic programming. *Computers & Chemical Engineering* 56 (2013), S. 27–36. DOI: 10.1016/j.compchemeng.2013.05.001.

WANG & FENG 2013

WANG, D. & FENG, X.: Simulation and multi-objective optimization of an integrated process for hydrogen production from refinery off-gas. *International Journal of Hydrogen Energy* 38.29 (2013), S. 12968–12976. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2013.04.077.

WEICKER 2015

WEICKER, K.: *Evolutionäre Algorithmen*. Springer Fachmedien Wiesbaden, 2015. DOI: 10.1007/978-3-658-09958-9.

ZIMMERMANN & WALZL 2012

ZIMMERMANN, H. & WALZL, R.: *Ethylene*. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Electronic Release*. Wiley-VCH, Weinheim, 2012.

ZIMMERMANN 2013

ZIMMERMANN, H.: *Propene*. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Electronic Release*. Wiley-VCH, Weinheim, 2013.

ZOBEL et al. 2005

ZOBEL, T., GROSS, B. & FIEG, G.: Ganzheitliche Optimierung eines industriellen Prozesses mit evolutionären Algorithmen. *Chemie Ingenieur Technik* 77.7 (2005), S. 932–937. DOI: 10.1002/cite.200500046.

ZOBEL et al. 2006

ZOBEL, T., GROSS, B., FIEG, G. & WOZNY, G.: Ganzheitliche Optimierung eines industriellen Batch-Prozesses mit evolutionären Algorithmen. *Chemie Ingenieur Technik* 78.9 (2006), S. 1319–1320. DOI: 10.1002/cite.200650132.