

**Entwurf und experimentelle  
Analyse eines Optimierverfahrens  
zur Parameteranpassung bei der  
Simulation von  
Stoffgleichgewichten**

Raphael Stür

Algorithm Engineering Report  
**TR09-2-012**  
Dez. 2009  
ISSN 1864-4503



Diplomarbeit

**Entwurf und experimentelle Analyse eines  
Optimierungsverfahrens zur  
Parameteranpassung bei der Simulation  
von Stoffgleichgewichten**

**Raphael Stür**  
**1. Oktober 2009**

Betreuer: Mike Preuß

Erst-Gutachter: Prof. Dr. Günter Rudolph

Zweit-Gutachter: Dr. Feelly Rüter

Fakultät für Informatik

Algorithm Engineering (Ls11)

Technische Universität Dortmund

<http://ls11-www.cs.uni-dortmund.de>



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Motivation und Hintergrund . . . . .	1
1.2	Zielsetzung . . . . .	2
1.3	Aufbau der Arbeit . . . . .	3
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>5</b>
2.1	Thermodynamische Grundlagen . . . . .	5
2.1.1	Systeme und Zustandsgrößen . . . . .	5
2.1.2	Hauptsätze der Thermodynamik . . . . .	7
2.1.2.1	Erster Hauptsatz der Thermodynamik . . . . .	7
2.1.2.2	Zweiter Hauptsatz der Thermodynamik . . . . .	8
2.1.3	Fundamentalgleichungen . . . . .	10
2.1.4	$PT$ -Diagramme . . . . .	12
2.1.5	Fugazität . . . . .	13
2.1.6	PC-SAFT Modell . . . . .	15
2.2	Lösung von Optimierungsproblemen . . . . .	15
2.2.1	Grundlagen der Optimierung . . . . .	16
2.2.1.1	Parameteranpassung . . . . .	18
2.2.1.2	Mehrkriterielle Optimierung . . . . .	19
2.2.2	Restriktionen im Definitionsbereich . . . . .	23
2.2.2.1	Straffunktionen . . . . .	23
2.2.2.2	Barrierefunktionen . . . . .	24
2.2.3	Evolutionäre Algorithmen . . . . .	25
2.2.4	Verwendete Optimierungsverfahren . . . . .	28
2.2.4.1	Quasi-Newton Verfahren . . . . .	28
2.2.4.2	Covariance Matrix Adaptation - Evolution Strategy . . . . .	29
2.2.4.3	$S$ -Metric Selection - Evolutionary Multi-Objective Algorithm . . . . .	32
2.3	Clustering . . . . .	34
2.4	Visualisierung hoch-dimensionaler Daten . . . . .	36
2.4.1	Parallelkoordinaten . . . . .	36

2.4.2	Scatterplots . . . . .	37
<b>3</b>	<b>Problemstellung</b>	<b>41</b>
3.1	Anpassung der Stoffparameter . . . . .	41
3.1.1	Variable Dimension des Problems . . . . .	42
3.1.2	Gültige und triviale Lösungen . . . . .	42
3.2	Simulation der Phasengleichgewichte . . . . .	43
3.2.1	Eingaben . . . . .	45
3.2.2	Ausgaben . . . . .	47
<b>4</b>	<b>Experimentelle Analyse</b>	<b>49</b>
4.1	Versuchsaufbau . . . . .	49
4.2	Teststoffe . . . . .	50
4.3	Gittertest . . . . .	50
4.3.1	Gibt es Zusammenhänge zwischen den Parametern? . . . . .	51
4.3.2	Ist die Zielfunktion multimodal? . . . . .	52
4.3.3	Wie groß ist das Attraktionsbasin? . . . . .	53
4.3.4	Können Ergebnisse auf andere Messreihen übertragen werden? . . . . .	54
4.3.5	Sind Ergebnisse auf andere Stoffe übertragbar? . . . . .	54
4.3.6	Existieren Unterschiede bei den trivialen Lösungen? . . . . .	55
<b>5</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>57</b>
5.1	Quasi-Newton Verfahren . . . . .	57
5.2	CMA-ES . . . . .	59
5.2.1	Resampling . . . . .	59
5.2.2	Straffunktion . . . . .	60
5.2.3	Evaluation der CMA-ES . . . . .	62
5.3	SMS-EMOA . . . . .	64
5.3.1	Gesamtfehler - Dichte . . . . .	64
5.3.2	Messreihenfehler - Messreihenfehler . . . . .	69
5.3.3	Kombination zur Erfolgssteigerung . . . . .	70
5.4	Beschleunigung des Verfahrens . . . . .	73
5.5	Qualität der Ergebnisse . . . . .	74
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>75</b>
<b>A</b>	<b>Fremdsoftware</b>	<b>77</b>
A.1	Mondrian . . . . .	77
A.2	gnuplot . . . . .	77
A.3	NOELTJE PG Paket . . . . .	78

<i>INHALTSVERZEICHNIS</i>	iii
A.4 CMA-ES . . . . .	78
A.5 PC-SAFT Simulator . . . . .	78
<b>B Parametersätze</b>	<b>79</b>
B.1 Suchraum . . . . .	79
B.2 Dateiformat der Eingabe . . . . .	79
B.3 Dateiformat der Ausgabe . . . . .	81
<b>C Handbuch jFit</b>	<b>85</b>
C.1 Installation . . . . .	85
C.2 Anpassung der Parameter . . . . .	85
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>92</b>
<b>Algorithmenverzeichnis</b>	<b>93</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>98</b>
<b>Erklärung</b>	<b>98</b>



# Kapitel 1

## Einleitung

*The leading thermodynamic properties of a fluid are determined by the relations which exist between the volume, pressure, temperature, energy, and entropy of a given mass of the fluid in a state of thermodynamic equilibrium.*

*Josiah W. Gibbs*

Die vorliegende Diplomarbeit bearbeitet die experimentelle Analyse des Problems der Parameteroptimierung bei der Simulation von Stoffgleichgewichten mit einem Simulator basierend auf dem PC-SAFT Modell. Aufbauend auf den Ergebnissen der Untersuchung der zugrundeliegenden Funktion werden verschiedene Optimierungsverfahren auf ihre Leistung hin an diesem Problem getestet und analysiert. Die Ergebnisse dieser Analyse werden dann für die Entwicklung eines maßgeschneiderten Algorithmus verwendet.

### 1.1 Motivation und Hintergrund

Die Thermodynamik beschäftigt sich mit der Überführung verschiedener Energieformen ineinander sowie mit Vorhersagen z.B. zur Löslichkeit von Stoffen auf Basis von Zustandsgleichungen, die aus den Hauptsätzen der Thermodynamik hervorgegangen sind. Der Lehrstuhl für Thermodynamik der Fakultät für Bio- und Chemieingenieurwesen an der Technischen Universität Dortmund beschäftigt sich insbesondere mit der Gleichgewichtsthermodynamik zur Vorhersage von Löslichkeiten.

Diese Vorhersagen sind nicht nur theoretisch sondern auch wirtschaftlich interessant, da die entsprechenden Experimente häufig extrem teuer oder auch gar nicht durchführbar sind. So kann z.B. für Flüssigkeiten das *PT-Diagramm* direkt bestimmt werden, indem bei verschiedenen Temperaturen und Drücken entsprechende Messungen durchgeführt werden. Diese Experimente sind aber bei Feststoffen nicht mehr möglich, da diese keine Flüssig-

oder Dampfphase aufweisen. Soll die Löslichkeit von z.B. Ibuprofen vorhergesagt werden, so existieren keine Reinstoffdaten für die Flüssig- und Dampfphasen. Folglich muss das Ibuprofen zunächst in einem Lösungsmittel gelöst werden. Im Anschluss daran können die Experimente durchgeführt werden. Wenn nun die Reinstoffdaten der Lösungsmittel hinreichend gut vorliegen, so können theoretisch aus den Daten mehrerer Experimente mit verschiedenen Lösungsmitteln die Reinstoffdaten des Ibuprofen gewonnen werden, die dann für weitere simulierte Vorhersagen mit anderen Lösungsmitteln ohne weitere Experimente verwendet werden können.

Zur Berechnung dieser Löslichkeiten wird nach dem Zustand mit minimaler *Entropie* in dem betrachteten System mit Hilfe der Zustandsgleichungen des PC-SAFT Modells gesucht, welcher einen Gleichgewichtszustand zwischen den beteiligten Komponenten bzw. zwischen den Phasen bei Zwei-Phasen-Systemen darstellt. Die beteiligten Phasen werden durch experimentell ermittelte Messreihen beschrieben. Während der Simulation wird versucht, mit den gegebenen Reinstoffparametern durch Variation der Dichte die Messreihen anzunähern. Dazu werden neben den anzupassenden Reinstoffparametern weitere chemische Eigenschaften benötigt um mittels der *Fugazitätskoeffizienten* und den Stoffmengen das Phasengleichgewicht zu bestimmen. Aber nicht jedes ermittelte Gleichgewicht ist gültig. So kann bei der Anpassung an die Messreihen für beide Phasen fälschlicherweise die gleiche Dichte ermittelt werden. Die bisherige manuelle Einstellung der Reinstoffparameter ist zeitaufwendig und soll zukünftig mittels eines automatisierten Optimierungsverfahrens durchgeführt werden.

## 1.2 Zielsetzung

In der vorliegenden Diplomarbeit soll ein Algorithmus entwickelt werden, der automatisiert einen guten Parametersatz für das zu analysierende System liefert. Aufgrund der Verschiedenartigkeit der betrachteten Systeme wird als Ziel die Ermittlung der Parametersätze für Zwei-Phasen-Systeme eines Stoffs zur Gewinnung der Reinstoffparameter definiert. Über den Suchraum ist noch nichts bekannt. Die Analyse des Suchraums ist Bestandteil der vorliegenden Diplomarbeit.

Zur Laufzeit oder zum Speicherplatzbedarf der entworfenen Lösung werden keine Vorgaben gemacht. Der Autor sieht jedoch als Obergrenze eine Laufzeitbeschränkung auf einen Tag vor, damit benötigte Parametersätze auch zeitnah zur Verfügung stehen. Ein Tag als Obergrenze ist auch deutlich unterhalb des Zeitaufwands für die manuelle Bearbeitung des Problems, welche zum Teil mehrere Tage Arbeitszeit in Anspruch nimmt.

Das entwickelte Verfahren soll möglichst ohne eigene Konfigurationsparameter auskommen, da diese das Problem nur von der Konfiguration der Parameter des PC-SAFT Modells hin zur Konfiguration der Parameter des Optimierungsverfahrens verlagern würden. Eine grobe Einschränkung des Suchraums durch den Einsatz von Expertenwissen wird jedoch voraus-

gesetzt um somit sowohl die Laufzeit als auch die Erfolgswahrscheinlichkeit signifikant zu erhöhen.

Wird die Aufgabenstellung für einen Satz von Teststoffen gut gelöst, können optional weitere komplexere Systeme wie z.B. Flüssig-Flüssig Gemische oder auch gelöste Feststoffe untersucht werden.

### 1.3 Aufbau der Arbeit

Das Kapitel 2 „Grundlagen“ stellt eine Einführung in die theoretischen Grundlagen der vorliegenden Diplomarbeit dar. Dazu wird in Kapitel 2.1 eine Einführung in die thermodynamischen Grundlagen der Problemdomäne gegeben. Dabei werden die zur Berechnung der Phasengleichgewichte relevanten Grundlagen kurz erläutert. In Kapitel 2.2 werden Optimierungsprobleme im Allgemeinen definiert sowie evolutionäre Algorithmen als eine Möglichkeit zur Lösung von Optimierungsproblemen eingeführt. Im Anschluss daran werden die in der Diplomarbeit verwendeten Algorithmen vorgestellt. Das Kapitel 2.3 gibt eine kurze Einführung in das Clustering, welches im entwickelten Algorithmus eingesetzt wird. Zum Abschluss werden in Kapitel 2.4 zwei Methoden zur Visualisierung hoch-dimensionaler Daten vorgestellt, die nicht trivial verständlich sind.

In Kapitel 3 „Problemstellung“ wird zunächst in Kapitel 3.1 auf die Notwendigkeit der Anpassung der Stoffparameter sowie dabei zu beachtende Besonderheiten und deren Einfluss auf das Problem eingegangen. Das Kapitel 3.2 beschreibt die Simulation zur Bestimmung der Phasengleichgewichte mit dem Simulator PC-SAFT und der am Lehrstuhl für Thermodynamik entwickelten Routine PHIEOS. Dabei wird auf die Ein- und Ausgaben des Simulators eingegangen, da diese die Schnittstellen zur Anbindung an das Optimierungsverfahren darstellen.

Das Kapitel 4 „Experimentelle Analyse“ beschreibt zunächst in Kapitel 4.1 den Versuchsaufbau, mit dem die Experimente durchgeführt werden, dazu gehört auch die Beschreibung der Teststoffe in Kapitel 4.2. In Kapitel 4.3 werden schließlich die Fragestellungen beschrieben, die mit den Versuchen beantwortet werden.

Mit dem Wissen aus Kapitel 4 werden in Kapitel 5 verschiedene Verfahren auf die Problemstellung angewendet und analysiert. In den Kapiteln 5.1 und 5.2 werden zunächst das *Quasi-Newton Verfahren* und die *Covariance Matrix Adaptation - Evolution Strategy* als lokale Suchverfahren näher betrachtet und deren Ergebnisse diskutiert. Das Kapitel 5.3 beschreibt einen mehrkriteriellen Ansatz zur globalen Suche mit verschiedenen Heuristiken und die Entwicklung eines mehrstufigen Verfahrens zur Bestimmung eines guten Parametersatzes. In Kapitel 5.4 wird das entwickelte Verfahren noch beschleunigt und in Kapitel 5.5 werden letztendlich die Ergebnisse des beschleunigten Verfahrens für die verschiedenen Teststoffe präsentiert und mit den manuellen Ergebnissen verglichen.

Das Kapitel 6 gibt eine Zusammenfassung der Erkenntnisse der Diplomarbeit und einen Ausblick auf weiterführende Möglichkeiten in Bezug auf die Problemstellung.

# Kapitel 2

## Grundlagen

Aufgrund der interdisziplinären Ausrichtung dieser Diplomarbeit gliedert sich dieses Kapitel in vier grundlegende Bereiche: Die Grundlagen der Thermodynamik, die die Problemdomäne beschreiben, die Grundlagen zur Optimierung, die das Basiswissen zu den verwendeten Lösungsmethoden bereitstellen, einen Abschnitt zu Clustering und schließlich ein separates Kapitel zur Visualisierung hoch-dimensionaler Daten, da Darstellungen in diesem Bereich nicht trivial verständlich sind.

### 2.1 Thermodynamische Grundlagen

Die Thermodynamik ist als Wissenschaft im Bereich der Chemie sowie der Physik angesiedelt. Entstanden ist die Thermodynamik durch die Untersuchung der Umwandlung von verschiedenen Energieformen während des Studiums der ersten Dampfmaschinen durch Nicolas Leonard Sadi Carnot im Jahr 1824. Innerhalb der darauf folgenden 60 Jahre wurden die Grundlagen der Thermodynamik vom ersten Hauptsatz bis hin zu der Gibbs-Helmholtz-Gleichung, über die auch Gleichgewichtszustände chemischer Prozesse berechnet werden können, entwickelt<sup>1</sup>. Mit Hilfe der Gleichgewichte kann die Thermodynamik auch Aussagen z.B. über die Löslichkeit in bestimmten Systemen treffen.

Im Nachfolgenden wird eine kurze Einführung in die Thermodynamik und somit in die Grundlagen der Problemdomäne dieser Diplomarbeit gegeben. Die in diesem Kapitel folgenden Definitionen sind, sofern nicht anders vermerkt, dem Buch „Thermodynamik“ [21] entnommen.

#### 2.1.1 Systeme und Zustandsgrößen

Um ein geistiges Erfassen komplexer Vorgänge zu ermöglichen, bedient sich die Wissenschaft der Modellbildung. Dazu wird die Realität unter bestimmten Annahmen zu vereinfachenden Modellen abstrahiert, um Zusammenhänge besser zu verstehen und gegebenenfalls

---

<sup>1</sup>Für eine kurze Geschichte der Thermodynamik siehe Baehr [1]

simulieren zu können. In der Thermodynamik werden zur Untersuchung abstrahierte und idealisierte Ausschnitte der Realität *System* genannt. Sämtliche Faktoren, die nicht in das betrachtete System integriert werden, werden *Umgebung* genannt.

Es werden drei verschiedene Arten von Systemen klassifiziert:

- *abgeschlossene Systeme*

Abgeschlossene Systeme können nicht mit ihrer Umgebung interagieren. Das bedeutet insbesondere, dass auch keine Energie aus einem abgeschlossenen System in die Umgebung entweichen kann und somit bleibt die Gesamtenergie in einem abgeschlossenen System immer konstant. Das Volumen kann veränderlich sein.

- *geschlossene Systeme*

Geschlossene Systeme erlauben im Gegensatz zu abgeschlossenen Systemen den Austausch von Energie mit ihrer Umgebung. Wird z.B. eine Turbine mit Wasserdampf betrieben, so wird Wärme in mechanische Energie umgesetzt. Diese Umsetzung erfolgt nur bis zu einem bestimmten Wirkungsgrad. Die Wärme, die diesen Wirkungsgrad übersteigt, wird an die Umgebung abgegeben.

- *offene Systeme*

In offenen Systemen kann zusätzlich zur Energie auch Materie mit der Umgebung ausgetauscht werden.

Ein System ist immer bemüht, einen ausgeglichenen Zustand zu erreichen. Es laufen also in einem System nur solange chemische Prozesse ab, wie dieser ausgeglichene Zustand noch nicht erreicht ist. Dieser Zustand wird durch chemische Zustandsgrößen wie z.B. die *Innere Energie* oder die *Entropie* beschrieben. Die Innere Energie ist die Energie, die in einem System gespeichert ist, z.B. durch starke Schwingungen der Moleküle in einer erhitzten Flüssigkeit. In einem ausgeglichenen Zustand ist die Zustandsgröße der Inneren Energie des Systems minimal. Die Anzahl der möglichen Zustandsgrößen ist beschränkt und es existieren Zusammenhänge zwischen ihnen. Diese Zusammenhänge werden in Form von Zustandsfunktionen charakterisiert.

Zum Austausch zwischen System und Umgebung wurden Austauschgrößen definiert. Die beiden wichtigsten sind die *Arbeit*  $W$  und die *Wärme*  $Q$ . Die Arbeit beschreibt einen Energietransport, der eine mechanische Bewegung über die Systemgrenzen hinweg bewirken kann. In der Mechanik wird die Arbeit als

$$dW \equiv F dz \tag{2.1}$$

definiert. Dabei ist  $F$  die Kraft, die in die Bewegungsrichtung mit der Einheit *Newton*<sup>2</sup>  $N$  wirkt und  $dz$  die aus dieser Kraft resultierende Ortsänderung in Metern  $m$ . Entsprechend ist

---

<sup>2</sup>Sir Isaac Newton (04.01.1643 - 31.03.1727) [8] war ein englischer Physiker, Mathematiker, Astronom, Alchemist, Philosoph und Verwaltungsbeamter.

die Einheit der Energie *Newtonmeter Nm* oder auch *Joule*<sup>3</sup> *J*. In der Thermodynamik wird, z.B. in Zylindern oder Hochöfen, durch hohe Drücke ein Material komprimiert. Die hierbei geleistete Arbeit wird *Volumenarbeit* genannt. Entsprechend wird als Kraftkomponente der *Druck*

$$P = F / A \quad (2.2)$$

verwendet (eine Kraft *F* wirkt auf die Fläche *A*) und anstelle der Distanzänderung in Bewegungsrichtung tritt die Volumenänderung *dV*:

$$dW = -P dV. \quad (2.3)$$

Das negative Vorzeichen entspricht der Konvention, dass einem System zugeführte Arbeit immer positiv und von einem System geleistete Arbeit immer negativ ist.

Der Vorgang, der die ablaufenden Veränderungen im System beschreibt, heißt *Prozess*. Ein Prozess heißt *reversibel* (umkehrbar), wenn die zugrundeliegende Zustandsänderung durch infinitesimal kleine Schritte erfolgt und in gleicher Weise wieder umgekehrt werden kann. Prozesse sind im Allgemeinen nicht reversibel, da z.B. durch Reibung immer ein Teil der aufgewendeten Arbeit in Form von Wärme an die Umgebung abgegeben wird. Für theoretische Betrachtungen sind reversible Prozesse als idealisierte Prozesse dennoch interessant.

## 2.1.2 Hauptsätze der Thermodynamik

Da von J. P. Joule nachgewiesen wurde, dass die Wärme *Q* eine Erscheinungsform der Energie ist und dass ein Zusammenhang zwischen der Arbeit *W* und der Wärme *Q* besteht, kann der Energieerhaltungssatz der Mechanik auf die Thermodynamik übertragen werden.

### 2.1.2.1 Erster Hauptsatz der Thermodynamik

Unter der Prämisse, dass die wesentlichen Austauschgrößen eines Systems mit seiner Umgebung die Wärme *Q* sowie die Arbeit *W* sind, werden bei der Definition des ersten Energieerhaltungssatzes die übrigen Energieformen wie magnetische oder elektrische Energie vernachlässigt.

**2.1.1 Definition (Erster Hauptsatz der Thermodynamik).** *Die Innere Energie U eines Systems kann sich nur durch die Zu- oder Abfuhr von Wärme und Arbeit ändern:*

$$\Delta U = Q + W, \quad (2.4)$$

*bzw. in differentieller Form*

$$dU = \delta Q + \delta W, \quad (2.5)$$

---

<sup>3</sup>James Prescott Joule (24.12.1818 - 11.10.1889) [1] war ein britischer Physiker. Ihm gelang der Nachweis der Äquivalenz von mechanischer Arbeit und Wärme.

wobei  $\delta$  ausdrücken soll, dass Wärme  $Q$  und Arbeit  $W$  in der Regel keine exakten Differentiale sind und die Innere Energie  $U$  deshalb nicht als direkte Funktion über die beiden Größen  $Q$  und  $W$  dargestellt werden kann.  $Q$  und  $W$  sind positiv, wenn diese dem System zugeführt werden und negativ sonst.

Abgewandelt lässt sich der erste Hauptsatz der Thermodynamik auch für die Volumenarbeit verwenden:

$$dU = \delta Q - P dV. \quad (2.6)$$

Der erste Hauptsatz der Thermodynamik kann also verwendet werden, um die für eine gewünschte Zustandsänderung benötigte Energie zu berechnen, sofern die funktionelle Abhängigkeit der Zustandsgrößen bekannt ist.

### 2.1.2.2 Zweiter Hauptsatz der Thermodynamik

Der erste Hauptsatz definiert die Überführung von verschiedenen Energieformen ineinander. Es wird aber keine Aussage über die Richtung der Umwandlung getroffen, obwohl diese essentiell für den Wirkungsgrad der Überführung ist. So kann Arbeit vollständig in Wärme überführt werden, umgekehrt ist dies jedoch nur sehr begrenzt möglich (ca. 40% in Kraftwerken). Als Maß für die Verlustenergie wird die Zustandsgröße der *Entropie*  $S$  eingeführt:

**2.1.2 Definition (Entropie).** Die Entropie ist der Anteil der Inneren Energie, der auch bei reversibler Prozessführung nicht in Arbeit umgewandelt werden kann:

$$dS \equiv \frac{\delta Q_{rev}}{T}. \quad (2.7)$$

Wird die Definition der Entropie umgeformt und in den ersten Hauptsatz eingesetzt, so erhält man

$$dU = T dS - P dV. \quad (2.8)$$

Die Änderung der Zustandsgröße der Inneren Energie  $U$  hängt also von der nicht wandelbaren Energie sowie von der Volumenarbeit ab.

Mit der Entropie  $S$  ist ein Maß für die in die Umgebung entweichende Energie definiert worden. Weiterhin soll eine Aussage über die Richtung, in die der Prozess abläuft, ermöglicht werden. Dazu soll folgendes Beispiel eines Wärmetauschers betrachtet werden:

Betrachtet werden zwei Wärmespeicher mit den unterschiedlichen Temperaturen  $T_1$  und  $T_2$  ( $T_1 > T_2$ ). Für jeden Wärmetauscher kann nun die Entropie berechnet werden:

$$dS_1 = -\frac{\delta Q}{T_1} \quad (2.9)$$

sowie

$$dS_2 = +\frac{\delta Q}{T_2}. \quad (2.10)$$

Die Entropien der beiden Wärmetauscher ergeben zusammen die Gesamtentropie des ablaufenden Prozesses:

$$dS = dS_1 + dS_2 = \delta Q \frac{T_1 - T_2}{T_1 \cdot T_2}. \quad (2.11)$$

Da  $\delta Q$  als Wärmedifferenz der beiden Wärmetauscher positiv sein muss und  $T_1 > T_2$  gilt, muss auch die Gesamtentropie  $dS$  positiv sein. Diese Beobachtungen haben zur Formulierung des folgenden Satzes geführt:

**2.1.3 Satz.** *Prozesse können nur dann ablaufen, wenn die Gesamtentropie zunimmt bzw. im Grenzfall reversibler Prozessführung konstant bleibt:  $dS \geq 0$ .*

Für die in dieser Diplomarbeit benötigte Gleichgewichtsthermodynamik fehlt noch die Beschreibung der Ausgleichvorgänge innerhalb des betrachteten Systems sowie die Einbeziehung der Mengen und Konzentrationen. Hierzu wurde von Gibbs<sup>4</sup> die *Molmenge*<sup>5</sup> in die Definition des zweiten Hauptsatzes für die  $N$  Komponenten des betrachteten Systems integriert:

$$dU = T dS - P dV + \sum_{i=1}^N \mu_i dn_i. \quad (2.12)$$

Dabei ist  $n_i$  die Molmenge der  $i$ -ten Komponente des Systems und

$$\mu_i = \left( \frac{\delta U}{\delta n_i} \right)_{S,V,n_j} \quad (2.13)$$

deren chemisches Potential, wobei die Molmenge aller übrigen Komponenten  $n_j$  mit  $n_j \neq n_i$  konstant bleibt. Diese Definition wird auch die *Gibbsche Fundamentalgleichung* genannt. An dieser Stelle wird durch Umformung der Gibbschen Fundamentalgleichung die besondere Bedeutung der Zustandsgrößen Druck  $P$  und Temperatur  $T$  klar:

$$T = \left( \frac{\delta U}{\delta S} \right)_{V,n_i} \quad (2.14)$$

bzw.

$$-P = \left( \frac{\delta U}{\delta V} \right)_{S,n_j}. \quad (2.15)$$

Abschließend sei hier noch das *Extremalprinzip* nach Clausius<sup>6</sup> und Gibbs erwähnt: Wenn die Entropie eines Prozesses immer positiv oder zumindest konstant sein muss, dann endet ein Prozess immer mit der maximalen Entropie. Die Umkehrung, dass ein Gleichgewichtszustand erreicht ist, wenn die Innere Energie  $U$  ihr Minimum erreicht hat, gilt ebenfalls.

<sup>4</sup>Josiah Willard Gibbs (11.02.1839 - 28.04.1903) [1] war ein amerikanischer Physiker. Er formulierte unter anderem die Gibbsche Phasenregel und den Begriff der freien Enthalpie.

<sup>5</sup>Das *Mol* ist die Einheit der Stoffmenge. Die Definition der Grundbegriffe zu Atom- und Molekülmassen kann Kapitel „8.1 Atom- und Molekülmassen“ in [10] entnommen werden.

<sup>6</sup>Rudolf Clausius (02.02.1818 - 24.08.1888) [1] war ein deutscher Physiker. Er formulierte unter anderem den zweiten Hauptsatz der Thermodynamik sowie den Begriff der Entropie.

### 2.1.3 Fundamentalgleichungen

Das Extremalprinzip und die Gibbsche Fundamentalgleichung stellen die allgemeinste Fassung des zweiten Hauptsatzes der Thermodynamik dar. Da durch die Extremalisierung der Gleichgewichtszustand erreicht werden kann, muss zwischen den beteiligten Zustandsgrößen folgender funktionaler Zusammenhang bestehen:

$$S = S(U, V, n_i) \quad (2.16)$$

bzw.

$$U = U(S, V, n_i). \quad (2.17)$$

Der Zustand eines Systems ist also durch die Molmengen  $n_i$  der beteiligten  $N$  Komponenten und der Volumenarbeit sowie wahlweise der Inneren Energie oder der Entropie, also  $n + 2$  Größen, bestimmt. Die *intensiven* Zustandsgrößen Temperatur  $T$ , Druck  $P$  sowie das chemische Potential  $\mu_i$  sind unabhängig von den eingesetzten Molmengen und können berechnet werden, sobald die Innere Energie, die Entropie und die Volumenarbeit bekannt sind. Diese wiederum sind jedoch *extensive* Zustandsgrößen und somit von der eingesetzten Molmenge abhängig. Die Verknüpfung der beiden unterschiedlichen Zustandsgrößen erfolgt über die Gibbsche Fundamentalgleichung, welche jedoch in dieser Form kaum anwendbar ist, da sowohl die Innere Energie als auch die Entropie nicht messbar sind.

Dieses Problem wurde durch die Definition der chemischen Potentiale gelöst, welche aus der Gibbschen Fundamentalgleichung abgeleitet wurden, aber auf leichter zu bestimmende Zustandsgrößen zurückgeführt werden können.

$$\text{Enthalpie } H \equiv U + PV \quad (2.18)$$

$$\text{Helmholtzsche (freie) Energie } A \equiv U - TS \quad (2.19)$$

$$\text{Gibbsche Enthalpie } G \equiv H - TS \quad (2.20)$$

Wenn für die chemischen Potentiale die totalen Differentiale gebildet und diese jeweils in die Gibbsche Fundamentalgleichung eingesetzt werden, erhält man:

$$dH = T dS + V dP + \sum_{i=1}^N \mu_i dn_i \quad (2.21)$$

$$dA = -S dT - P dV + \sum_{i=1}^N \mu_i dn_i \quad (2.22)$$

$$dG = -S dT + V dP + \sum_{i=1}^N \mu_i dn_i \quad (2.23)$$

Sowohl die Gibbsche Enthalpie als auch die Helmholtzsche Energie<sup>7</sup> lassen sich vollständig aus den messbaren Größen Temperatur und Druck bzw. Volumenarbeit und den Molmen-

---

<sup>7</sup>Hermann von Helmholtz (31.08.1821 - 08.09.1894) [1] war ein deutscher Physiologe und Physiker. Er formulierte unter anderem die detaillierte Fassung des Energieerhaltungssatzes sowie den Begriff der freien Energie, welche nach ihm auch Helmholtz-Energie genannt wird.

gen bestimmen. Über die Minimierung der Gibbschen Enthalpie kann direkt das Zustandsgleichgewicht abgeleitet werden.

Bei der Bestimmung eines Gleichgewichtszustands können weitere Nebenbedingungen als Lagrange-Multiplikatoren<sup>8</sup> in die Berechnung des Minimums integriert werden. So ist z.B. bei der Bestimmung des Phasengleichgewichts bei einem Ein-Komponenten-System entscheidend, dass die Dichte in den unterschiedlichen Phasen an dem gefundenen Minimum nicht identisch ist, da zwei unterschiedliche Phasen nicht die gleiche Dichte aufweisen können. Näheres zu den unterschiedlichen Phasen einer Komponente kann dem Abschnitt 2.1.4 zur Erklärung der Dampfdruckkurve entnommen werden. Für Mehr-Komponenten-Systeme lässt sich die Minimierung aus  $U = U(S, V, n_i)$  unter bestimmten Nebenbedingungen verallgemeinern:

$$U = U^\alpha + U^\beta + \dots + U^\pi = \text{Min!}, \quad (2.24)$$

$$S = S^\alpha + S^\beta + \dots + S^\pi = \text{konstant}, \quad (2.25)$$

$$V = V^\alpha + V^\beta + \dots + V^\pi = \text{konstant}, \quad (2.26)$$

$$n_i = n_i^\alpha + n_i^\beta + \dots + n_i^\pi = \text{konstant} \quad (2.27)$$

mit  $i = 1, \dots, N$  Anzahl der Komponenten. Die Angabe „konstant“ basiert darauf, dass bei der Berechnung von Gleichgewichtszuständen eines Systems kein Austausch mit der Umgebung, sondern sämtlicher Austausch ausschließlich zwischen den Komponenten stattfindet. Entsprechend kann sich die gesamte Innere Energie sowie die gesamte Entropie zwischen den einzelnen Komponenten nur anders verteilen, aber nicht entweichen, und bleibt somit in der Summe konstant. Selbiges gilt für die Volumenarbeit und die verwendeten Molmenngen der Komponenten in dem betrachteten System.

Da der Gesamt-Gleichgewichtszustand nur erreicht werden kann, wenn ein Gleichgewicht in jeder Phase besteht, muss auch die Gibbsche Fundamentalgleichung für jede Phase erfüllt sein. In dieser sind auch die intensiven Zustandsgrößen enthalten, die für das gesamte System gelten müssen, und somit folgende Nebenbedingungen ergeben:

$$T^\alpha = T^\beta = \dots = T^\pi \quad (2.28)$$

$$P^\alpha = P^\beta = \dots = P^\pi \quad (2.29)$$

$$\mu_i^\alpha = \mu_i^\beta = \dots = \mu_i^\pi \quad (2.30)$$

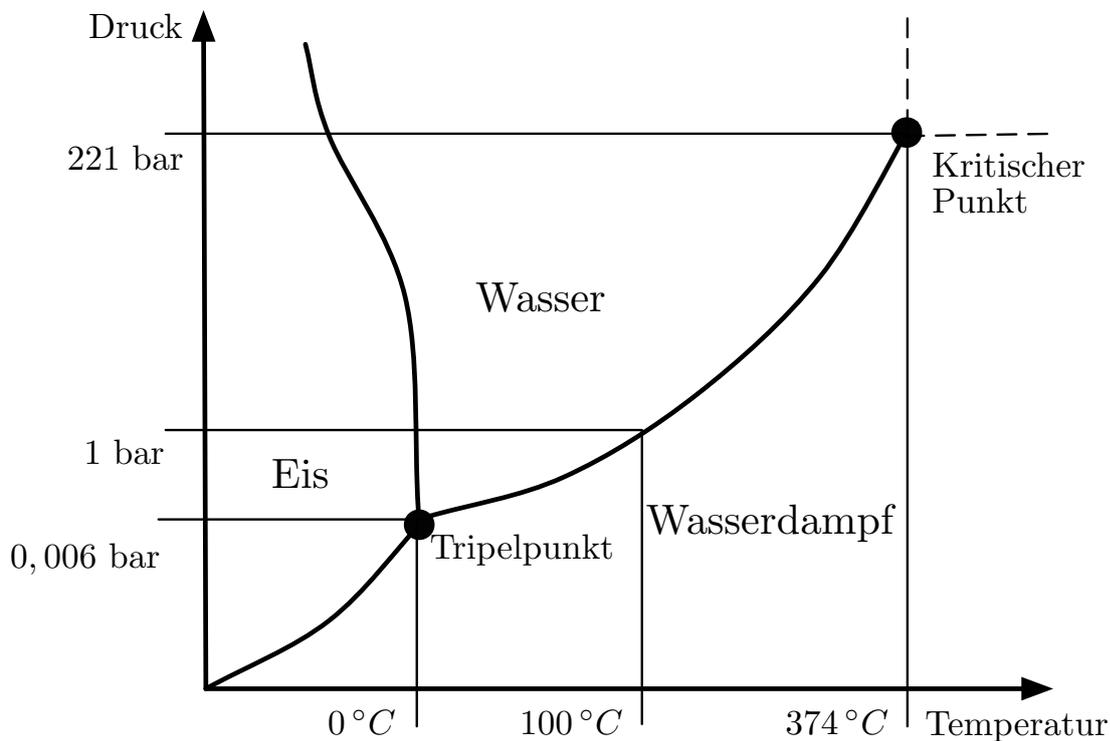
Wenn das gesamte *PVT-Verhalten* (Druck-Volumenarbeit-Temperatur-Verhalten) eines Stoffs bekannt ist, kann der Gleichgewichtszustand durch die Angabe einer Zustandsgröße bestimmt werden.

---

<sup>8</sup>Siehe „Multiplikatorenmethode von Lagrange“ in [9].

### 2.1.4 *PT*-Diagramme

Die Parameteranpassung zu den Zielen dieser Diplomarbeit findet bei der Berechnung von Phasengleichgewichten von Ein-Komponenten-Systemen statt, in denen die Modellparameter so gewählt sein müssen, dass die ermittelte Phasentrennung möglichst gut der vorgegebenen gemessenen *Dampfdruckkurve* entspricht. Die Dampfdruckkurve wird besonders deutlich in einem *PT-Diagramm*. *PT*-Diagramme beschreiben eine Projektion des dreidimensionalen *PvT-Diagramms* [21] eines Stoffs. *P* steht dabei für den Druck und *T* für die Temperatur. Diese beiden Zustandsgrößen werden auf den Achsen aufgetragen, die eingezeichneten Kurven trennen die Phasen voneinander.



**Abbildung 2.1:** Das schematische *PT*-Diagramm zeigt die drei verschiedenen Aggregatzustände von Wasser. Die Trennlinien zwischen den Bereichen beschreiben die Übergänge zwischen den Phasen in Abhängigkeit von Temperatur und Druck.

Das *PT*-Diagramm in Abbildung 2.1 zeigt drei separate Bereiche, in denen das Wasser seine drei unterschiedlichen Aggregatzustände annimmt: Eis, Wasser und Wasserdampf. Die Trennlinien dazwischen kennzeichnen die Übergangsbereiche zwischen den einzelnen Aggregatzuständen, z.B. wann Wasserdampf anfängt zu kondensieren. Der *Tripelpunkt* ist die Stelle, an der ein Phasenübergang in jeden der drei Aggregatzustände möglich ist. Die Kurve vom Ursprung zum Tripelpunkt heißt *Sublimationskurve*, die *Schmelzkurve* kennzeichnet die Trennung zwischen Eis und Wasser und die Dampfdruckkurve trennt den Phasenübergang von Wasserdampf und Wasser. Diese reicht vom Tripelpunkt bis zum *kri-*

*tischen Punkt.* Oberhalb des kritischen Punkts ist die rechte obere Ecke des Diagramms mit gestrichelten Linien abgetrennt. Dies ist der Bereich, in dem der Druck und die Temperatur so extrem sind, dass nicht mehr unterschieden werden kann, ob sich das Wasser gerade in der flüssigen oder der gasförmigen Phase befindet.

Bei Betrachtung des Diagramms fällt auf, dass z.B. der *Siedepunkt*, an dem Wasser zu kochen beginnt, nicht nur auf der Temperatur beruht, sondern auch vom Druck abhängt. So gilt die Aussage: „Wasser kocht bei 100 Grad Celsius“ nur bei normalem atmosphärischen Druck auf der Höhe des Meeresspiegels. Auf Bergen kocht das Wasser bereits eher.

Das  $PvT$ -Verhalten eines Stoffs wird mit dem *idealen Gas* berechnet, welches in der Realität nicht vorkommt. Entsprechend muss bei den Berechnungen eine Korrekturgröße für die Abweichung vom idealen Gas eingeführt werden: die *Fugazität*.

### 2.1.5 Fugazität

Das ideale Gasgesetz beschreibt ein ideales Gas als

$$PV = n_T RT \quad (2.31)$$

wobei  $R$  die *universelle Gaskonstante* und  $n_T$  die gesamte Molmenge ist. Die Abstraktion des idealen Gases  $g^{id}$  von einem realen Gas  $g$  besteht in den Annahmen, dass die Moleküle des Gases kein Eigenvolumen besitzen und untereinander keine *Wechselwirkungen*<sup>9</sup> stattfinden, welches einer Umgebung ohne Druck entspricht. Wird eine konstante Temperatur angenommen, so gilt

$$dg^{id} = \frac{RT}{P} dp = RT d \ln P. \quad (2.32)$$

Um die Annahmen des idealen Gases zu korrigieren, wurde die Fugazität<sup>10</sup>  $f$  definiert. Die Fugazität ersetzt den Druck  $P$  in der Zustandsgleichung des idealen Gases, um diese an die realen Eigenschaften anzupassen:

$$dg = RT d \ln f. \quad (2.33)$$

Die Korrektur muss für geringen Druck gegen den idealen Zustand des Gases streben, also muss

$$\lim_{P \rightarrow 0} \frac{f}{P} = 1 \quad (2.34)$$

gelten. Diese Überlegung führt zur Definition des *Fugazitätskoeffizienten*

$$\varphi \equiv \frac{f}{P}. \quad (2.35)$$

<sup>9</sup>Die hier beschriebenen Wechselwirkungen beziehen sich auf die sogenannte Ionenbindung, welche in Kapitel „3.2 Die Ionenbindung“ in [10] erläutert wird.

<sup>10</sup>lateinisch: fugare = flüchten

Die Fugazität kann verwendet werden, um den Realanteil der Gibbschen Enthalpie darzustellen, der sich aus der Abweichung zur universellen Gaskonstante ergibt. So ist die Gibbsche Enthalpie für ideale Stoffe

$$g^{id}(T, P) = g^{id}(T, P^0) + RT \ln \frac{P}{P^0}. \quad (2.36)$$

Wird nun die Definition der Fugazität anstelle des Drucks verwendet, so ergibt sich

$$g(T, P) = g(T, P^0) + RT \ln \frac{f}{f^0}. \quad (2.37)$$

$P^0$  und  $f^0$  sind frei wählbare Bezugspunkte. Der Realanteil entspricht also der Differenz dieser beiden Gleichungen:

$$(g - g^{id})_{T,P} = (g - g^{id})_{T,P^0} + RT \ln \frac{f}{f^0} \frac{P^0}{P}. \quad (2.38)$$

Wird nun der Limes<sup>11</sup> des Bezugsdruckes  $P^0$  gegen 0 gebildet, so streben  $f^0$  und  $P^0$  gegen 1 sowie die Differenz aus  $g$  und  $g^{id}$  gegen 0. Damit ergibt sich

$$(g - g^{id})_{T,P} = RT \ln \frac{f}{P} = RT \ln \varphi. \quad (2.39)$$

Der Zusammenhang zwischen Fugazität und Gibbscher Enthalpie lässt sich wiederum dazu nutzen, das Phasengleichgewicht, welches bereits zuvor als Minimierungsproblem definiert wurde, über die Fugazität zu definieren:

**2.1.4 Definition (Phasengleichgewicht).** *Ein Phasengleichgewicht liegt genau dann vor, wenn für  $i = 1, \dots, N$  Stoffe in den Phasen  $\alpha, \dots, \phi$  die Fugazitäten übereinstimmen:*

$$f_i^\alpha = f_i^\beta = \dots = f_i^\phi \quad (2.40)$$

In der Formulierung des Phasengleichgewichts mittels des Fugazitätskoeffizienten müssen zusätzlich die Stoffmengenanteile der einzelnen Komponenten mit angegeben werden:

$$x_i^\alpha \varphi_i^\alpha = x_i^\beta \varphi_i^\beta = \dots = x_i^\phi \varphi_i^\phi. \quad (2.41)$$

Zusätzlich müssen der Druck sowie die Temperatur in allen Phasen übereinstimmen, wie es bereits bei der Definition des Minimierungsproblems gefordert war.

Durch die Verwendung der Fugazität entstehen nun die gleichen Vorteile bei der Gleichgewichtsbestimmung wie bei der Berechnung der Gibbschen Enthalpie: Es wird nur noch auf einfach zu ermittelnde Größen zurückgegriffen.

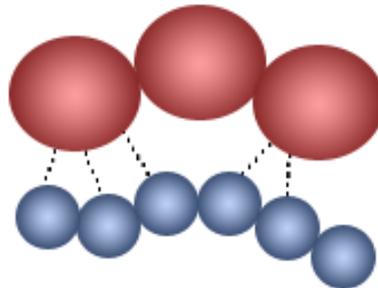
<sup>11</sup>Zur Erinnerung: Ideale Gase werden bei einem Druck von 0 gemessen.

### 2.1.6 PC-SAFT Modell

In diesem Abschnitt wird die Idee des verwendeten PC-SAFT (*Perturbed-Chain Statistical Associating Fluid Theory equation of state*) Modells kurz vorgestellt.

Anschaulich wird beim PC-SAFT Modell zur Modellierung von Molekülen eine Aneinanderreihung von (Teil-) Kugeln in Form einer Kette verwendet. Wie die Glieder einer Kette können sich auch die einzelnen Kugeln zueinander verdrehen. So kann ein einzelnes Molekül mittels einer gewissen Anzahl von Kugeln mit einem bestimmten Durchmesser beschrieben werden. Die Wechselwirkungen zwischen den Molekülen, sowohl durch Wasserstoffbrückenbindungen<sup>12</sup> als auch durch polare Wechselwirkungen, wird durch eine Verteilung von möglichen Anziehungspunkten entlang der Kugelkette beschrieben, welche eine ebenfalls im Modell parametrisierte Bindungsstärke aufweisen. Diese Bindungen zu anderen Molekülen oder auch zu sich selbst sind dann für die Orientierung der einzelnen Kugeln der Kette im Raum verantwortlich. Abbildung 2.2 zeigt beispielhaft zwei Ketten, deren Orientierung im Raum sowie die bestehenden Wechselwirkungen in Form von gestrichelten Linien.

Die Berechnungen der Zustandsgrößen knüpfen an die zuvor beschriebenen Grundlagen an. Details zu den verwendeten Zustandsgleichungen können dem Originalaufsatz von Gross und Sadowski [24] entnommen werden.



**Abbildung 2.2:** Diese schematische Beispielzeichnung zeigt zwei unterschiedliche Moleküle modelliert als Ketten von Kugeln, eines dreigliedrig in Rot und eines sechsgliedrig in Blau, gemäß des PC-SAFT Modells. Die gestrichelten Linien stellen Wechselwirkungen zwischen den Molekülen dar.

## 2.2 Lösung von Optimierungsproblemen

Optimierungsprobleme sind nicht nur aus den Ingenieurwissenschaften bekannt, z.B. wenn die Effizienz einer Maschine gesteigert werden soll, sondern sie begegnen jedem im Alltag,

<sup>12</sup>Eine Erklärung der Funktionsweise der Wasserstoffbrückenbindung kann Kapitel „3.4 Van der Waals-Kräfte und Wasserstoffbrücken“ in [10], Seite 122ff, entnommen werden.

z.B. wenn die Einkaufsrouten geplant oder der Wochenplan erstellt wird. Entsprechend dieser weiten Verbreitung von Optimierungsproblemen und deren Vielfältigkeit wurde auch eine Vielzahl von verschiedenen Lösungsmöglichkeiten entwickelt. Jede dieser Möglichkeiten hat ihre Existenzberechtigung für ein spezifisches Problem. Diese Aussage wird theoretisch durch das *No Free Lunch Theorem* nach Wolpert und Macready [43] hinterlegt: Die Performance verschiedener Algorithmen über alle existierenden Probleme ist im Schnitt immer gleich. Jeder Algorithmus erkaufte sich also seine Vorteile bei bestimmten Problemen auf Kosten von Nachteilen bei anderen Problemen.

In diesem Abschnitt wird zunächst eine Definition für Optimierungsprobleme gegeben um danach auf die Parameteranpassung und den Spezialfall der mehrkriteriellen Optimierung einzugehen. Im Anschluss daran werden die evolutionären Algorithmen als eine Möglichkeit zur nicht-deterministischen Optimierung eingeführt. Nachdem die Prinzipien allgemein definiert wurden, werden die in dieser Diplomarbeit verwendeten Algorithmen erläutert.

### 2.2.1 Grundlagen der Optimierung

Um ein Optimierungsproblem mathematisch und algorithmisch fassen zu können, muss dieses formal definiert werden. Dazu wird zunächst der Begriff des *globalen Optimums* [35, 23] benötigt.

**2.2.1 Definition (Globales Optimum).** *Der Wert  $f(x^*)$  einer Funktion  $f : M \subseteq D_f \subseteq \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R}$  mit  $M \neq \emptyset$  und  $x^* \in M$  heißt **globales Minimum** von  $f$ , falls gilt:*

$$\forall x \in M : f(x^*) \leq f(x). \quad (2.42)$$

*Die Aufgabe, einen Punkt  $x^* \in M$  zu bestimmen, für den die Funktion  $f$  das globale Minimum annimmt, heißt das **globale Optimierungsproblem**. Die Funktion  $f$  heißt dann eine **Zielfunktion** und die Teilmenge  $M$  ihres Definitionsbereichs  $D_f$  der **zulässige Bereich**. Jedes Element des zulässigen Bereichs heißt ein **zulässiger Punkt** oder eine **zulässige Lösung**. Wenn die Zielfunktion für einen zulässigen Punkt den globalen Minimalwert annimmt, so nennt man diesen Punkt eine **globale Minimalstelle** oder eine **optimale Lösung**.*

Die Definition des Optimums beruht auf dem Minimum einer Funktion. Dies ist aufgrund der Beziehung

$$\min\{f(x)|x \in M \subseteq \mathbb{R}^n\} = -\max\{-f(x)|x \in M \subseteq \mathbb{R}^n\} \quad (2.43)$$

aber keine Beschränkung der Allgemeinheit. Beide Definitionsmöglichkeiten sind ineinander überführbar, wovon später auch Gebrauch gemacht wird.

Wenn eine Funktion mehr als ein Optimum aufweist, so wird zwischen globalen und lokalen Optima unterschieden:

**2.2.2 Definition (lokales Optimum).** Der Wert  $f(x^*)$  einer Funktion  $f : M \subseteq \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R}$  mit  $M \neq \emptyset$  und  $x^* \in M$  heißt ein **lokales Minimum** oder ein **lokaler Minimalwert** von  $f$ , falls eine  $\epsilon$ -Umgebung  $U_\epsilon(x^*)$  von  $x^*$  existiert, so dass gilt:

$$\forall x \in M \cap U_\epsilon(x^*) : f(x^*) \leq f(x). \quad (2.44)$$

Das exakte mathematische Optimum wird während der praktischen Optimierung selten erreicht. Vielmehr wird eine Lösung als Optimum akzeptiert, wenn diese sich so dicht am Optimum befindet, dass das Optimum bei der verwendeten Genauigkeit nicht besser angenähert werden kann. Das exakte Optimum wird also durch einen als Optimum akzeptierten Bereich  $U_{\epsilon'}(x^*)$  beschrieben. Damit ergibt sich für die Definition des globalen Optimums

$$\forall x \in M \setminus U_{\epsilon'}(x^*) : f(x^*) \leq f(x) \quad (2.45)$$

sowie

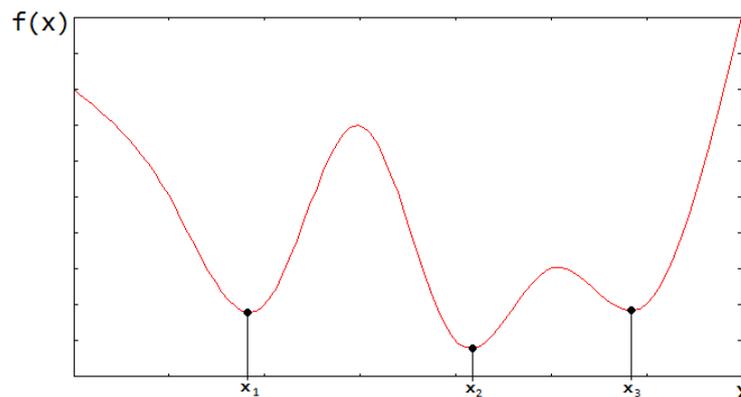
$$\forall x \in M \setminus U_{\epsilon'}(x^*) \cap U_\epsilon(x^*) : f(x^*) \leq f(x) \quad (2.46)$$

für die Definition des lokalen Optimums, wobei  $U_\epsilon(x^*) > U_{\epsilon'}(x^*)$  gelten sollte.

Eine Funktion  $f$  heißt *unimodal*, wenn sie nur ein Optimum aufweist und *multimodal* sonst. Abbildung 2.3 zeigt ein Beispiel einer multimodalen Funktion. Damit lässt sich das globale Optimierungsproblem nun wie folgt definieren:

**2.2.3 Definition (Globales Optimierungsproblem).** Bestimme ein  $x^* \in M$  mit

$$f(x^*) = \min\{f(x) | x \in M \subseteq \mathbb{R}^n\}. \quad (2.47)$$



**Abbildung 2.3:** Beispiel einer *multimodalen* Funktion mit den Punkten  $x_1$  und  $x_3$  als lokale Optima und  $x_2$  als globales Optimum.

Die Definition des Optimums über den zulässigen Bereich  $M$  als Teilmenge des Definitionsbereichs  $D_f$  legt die Existenz von Einschränkungen innerhalb des Optimierungsproblems nahe:

**2.2.4 Definition (Restriktion).** Sei  $M := \{x \in \mathbb{R}^n \mid g_i(x) \leq 0, i = 1, \dots, m\}$  der zulässige Bereich des globalen Optimierungsproblems. Dann heißen die Funktionen  $g_i$  die **Restriktionen** oder **Nebenbedingungen** des globalen Optimierungsproblems. Eine Nebenbedingung  $g_i$  heißt in einem Punkt  $x' \in \mathbb{R}^n$

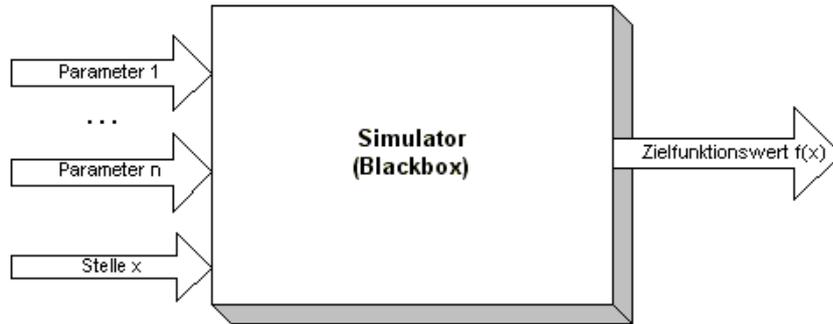
1. **erfüllt**, falls  $g_i(x') \leq 0$ ,
2. **aktiv**, falls  $g_i(x') = 0$ ,
3. **inaktiv**, falls  $g_i(x') < 0$  und
4. **verletzt**, falls  $g_i(x') > 0$ .

Ist die Zielfunktion  $f$  also vollständig bekannt, so kann das Optimierungsproblem mit den Methoden der Analysis gelöst werden, indem die erste und zweite Ableitung gebildet und die Nullstellen berechnet werden. Ist dieses Vorgehen nicht möglich, dann muss mittels geeigneter numerischer Verfahren das Optimum gesucht werden.

### 2.2.1.1 Parameteranpassung

Bei der Parameteranpassung wird zugrunde gelegt, dass das Ergebnis der Zielfunktion unmittelbar von den Parametern abhängt, welche als Eingabe verwendet wurden. Ist die Zielfunktion in mathematischer Form bekannt, so lässt sich der Funktionswert in Abhängigkeit der Parameter direkt ausrechnen und man spricht von *Whitebox*-Optimierung. Anschaulich entspricht diese Form der Optimierung einer Funktionenschar, aus der die beste Funktion ausgewählt werden muss. Liegt die Zielfunktion nicht in mathematischer Form sondern nur indirekt, z.B. in Form eines Simulators, vor, so wird von *Blackbox*-Optimierung gesprochen: Die Eingabeparameter werden an die Blackbox übergeben, die mit diesen eine unbekannte Berechnung durchführt und nach einiger Zeit den Zielfunktionswert als Ergebnis ausgibt. Aufgrund der unbekanntenen Eigenschaften der Zielfunktion kann bei der Blackbox-Optimierung kein konkretes Problemwissen zur Optimierung verwendet werden [16]. Eine schematische Darstellung zur Blackbox-Optimierung zeigt Abbildung 2.4.

Bei der Parameteranpassung können sich einzelne Eingabeparameter auch gegenseitig beeinflussen. So kann z.B. eine vollständige Korrelation dazu genutzt werden, um die Dimension des Problems zu reduzieren, indem nur einer der korrelierten Parameter berücksichtigt wird. Auch kann eine mehrstufige Optimierung sinnvoll sein, wenn die wesentlichen Eigenschaften einer guten Lösung nur von einem Teil der Eingabeparameter abhängen. Dabei wird dann zunächst nach einem Optimum für die wesentlichen Eigenschaften gesucht und die restlichen Parameter nicht berücksichtigt. In einem zweiten Schritt werden dann die wesentlichen Parameter mit den Ergebnissen aus dem ersten Schritt als konstant angenommen und die restlichen Parameter angepasst.



**Abbildung 2.4:** Schaubild der Blackbox-Optimierung: Die Eingabeparameter werden zusammen mit einer Stelle  $x$  als Anfrage an die Blackbox gestellt. Nach einiger Zeit kann der Zielfunktionswert als Ergebnis am Ausgang der Blackbox abgelesen werden.

In dieser Diplomarbeit wird nach dem Blackbox-Schema der Simulator PC-SAFT mit Eingabeparametern versorgt und dessen Ergebnisse weiterverarbeitet.

### 2.2.1.2 Mehrkriterielle Optimierung

Nicht jedes Optimierungsproblem ist eindeutig lösbar im Sinne eines globalen Optimums. Wenn mit der Optimierung mehrere verschiedenartige Ziele zugleich verfolgt werden, dann können in der Regel nicht alle Ziele gleichzeitig optimal erfüllt werden. Dieser Sachverhalt lässt sich sehr gut in einem Spinnennetzdiagramm<sup>13</sup> veranschaulichen: Jede der nach außen strebenden Linien stellt eine Zielsetzung dar. Eine gefundene Lösung ist ein Linienzug zwischen den einzelnen Ausprägungen. Für jede Ausprägung nimmt die Güte mit zunehmender Entfernung vom Zentrum zu<sup>14</sup>. Die Abbildung 2.5 zeigt drei Lösungen: Die erste Lösung ist grün eingezeichnet, die zweite Lösung blau. Das Bemerkenswerte an den Lösungen ist, dass diese nicht vergleichbar sind, da sie unterschiedliche Ziele bedienen. Die dritte, rot eingezeichnete Lösung, ist hingegen bei allen Zielsetzungen schlechter oder maximal von gleicher Güte wie die blaue Lösung. Die blaue Lösung ist damit der roten in jedem Fall vorzuziehen, man spricht von der *Dominanz* der blauen Lösung.

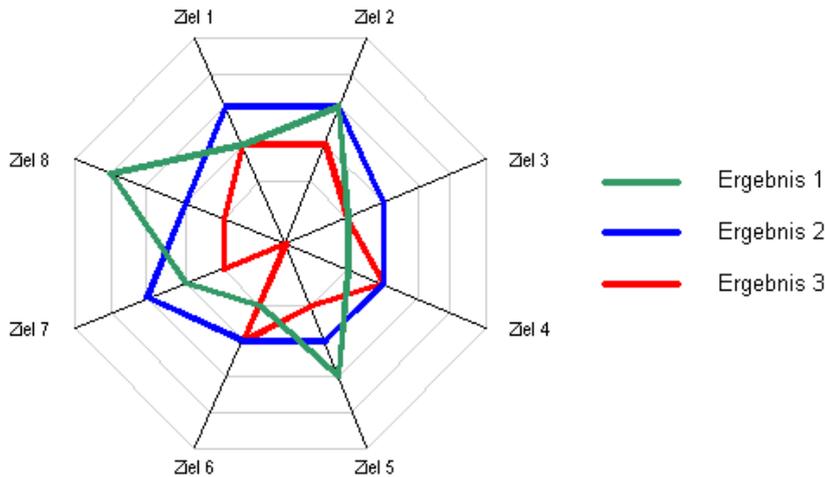
Die obige Beschreibung soll nun nach Coello Coello [11] formalisiert werden.

**2.2.5 Definition (Pareto-Optimalität).** Eine Lösung  $\vec{x}^* \in M$  heißt **pareto-optimal** bezüglich  $M$  gegeben einer Zielfunktion  $F(x)$  genau dann, wenn es kein  $\vec{x}' \in M$  gibt, so dass  $\vec{v} = F(x^*) = (f_1(x^*), \dots, f_k(x^*))$  von  $\vec{u} = F(x') = (f_1(x'), \dots, f_k(x'))$  **dominiert** wird, wobei  $f_1(x), \dots, f_k(x)$  die  $k$  verschiedenen Zielsetzungen sind.

Die Lösungen der mehrkriteriellen Optimierung sind Vektoren deren Komponenten die Erfüllung eines bestimmten Ziels widerspiegeln. Die Definition der Pareto-Optimalität be-

<sup>13</sup>Auch *Sternförmige Koordinaten* genannt [36].

<sup>14</sup>Zum Zentrum zunehmende Güte ist ebenfalls möglich, allerdings müssen dann alle nachfolgenden Beschreibungen umgekehrt werden.



**Abbildung 2.5:** Beispiel eines Spinnennetzdiagramms mit 8 unterschiedlichen Zielsetzungen. In das Diagramm sind drei Ergebnisse eingezeichnet: Ergebnis 2 (blau) dominiert Ergebnis 3 (rot). Ergebnis 1 (grün) ist mit den anderen beiden Ergebnissen unvergleichbar.

müht den Begriff der *Pareto-Dominanz*, welche mittels einer geeigneten Ordnungsrelation auf der Menge der Ergebnisse definiert wird:

**2.2.6 Definition (Pareto-Dominanz).** Ein Vektor  $\vec{u} = (u_1, \dots, u_k)$  **dominiert** einen Vektor  $\vec{v} = (v_1, \dots, v_k)$ ,  $\vec{u} \preceq \vec{v}$ , genau dann, wenn gilt:

$$\forall i \in \{1, \dots, k\} : u_i \leq v_i \wedge \exists i \in \{1, \dots, k\} : u_i < v_i. \quad (2.48)$$

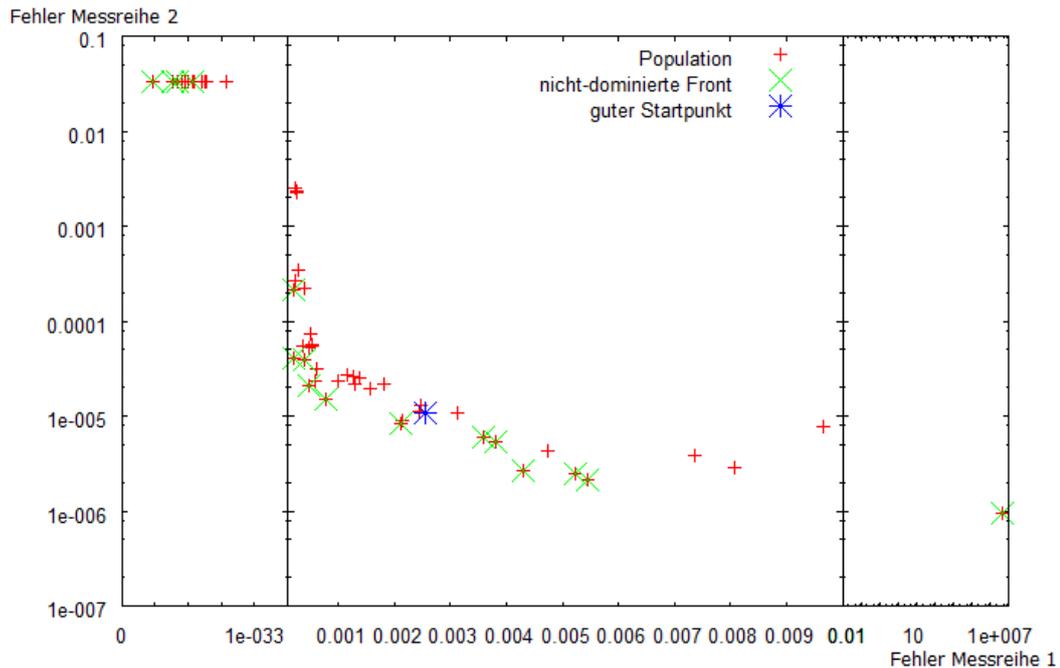
Ein Lösung kann also nur eine andere Lösung dominieren, wenn sie niemals schlechter und mindestens bei einer Zielsetzung besser ist. Wenn in einer Menge von Lösungen keine Lösung eine andere dominiert, so spricht man von der *Unvergleichbarkeit* der Lösungen.

**2.2.7 Definition (Pareto-Menge).** Für ein gegebenes mehrkriterielles Optimierungsproblem mit der Zielfunktion  $F(x)$  ist die **Pareto-Menge**  $\mathcal{P}$ , auch **Pareto-Set** genannt, die Menge von unvergleichbaren Lösungen, für die gilt:

$$\mathcal{P} := \{\vec{x} \in M \mid \neg \exists \vec{x}' \in M : F(\vec{x}') \preceq F(\vec{x})\}. \quad (2.49)$$

**2.2.8 Definition (Pareto-Front).** Für ein gegebenes mehrkriterielles Optimierungsproblem ist die **Pareto-Front**  $\mathcal{PF}$  das Bild der Lösungen der Pareto-Menge  $\mathcal{P}$  im Lösungsraum  $\mathbb{R}^n$ .

Es gibt also für ein gegebenes mehrkriterielles Optimierungsproblem nicht nur ein Optimum, sondern eine Menge von nicht-dominierten Optima, welche zusammen die *nicht-dominierte Front* bilden und die Pareto-Front annähern (siehe Abbildung 2.6). Die äußeren



**Abbildung 2.6:** Beispiel einer nicht-dominierten Front für den Stoff 1-Propanol. Aufgetragen wurde das Ergebnis des *SMS-EMOA* (siehe Abschnitt 2.2.4.3) für die Optimierung nach den einzelnen Messreihenfehlern. Aufgrund der extremen Werte an den Rändern der nicht-dominierten Front wurde für die Ordinate eine logarithmische Skala gewählt und es existiert ein Sprung auf der Abszisse von  $10^{-34}$  bis 0,0001. Der interessante Bereich ist in der Mitte, wo die Punktdichte am höchsten ist, zu sehen und wird als *Knie* bezeichnet.

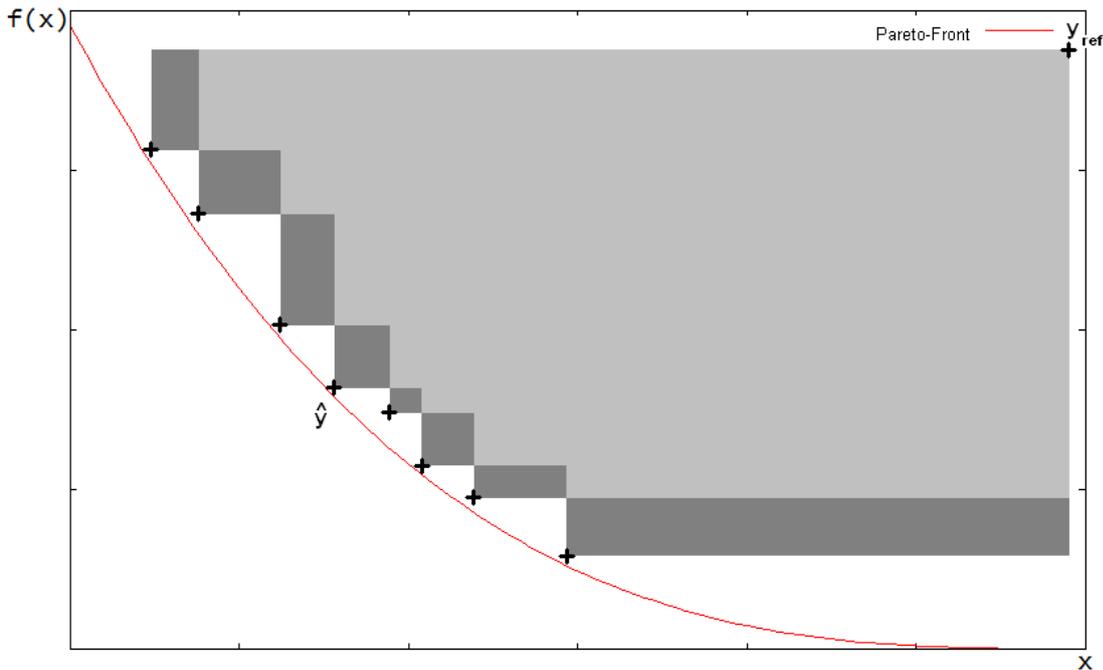
Enden der nicht-dominierten Front stellen Lösungen dar, die Extreme in einer der Zielsetzungen enthalten, während die Punkte im *Knie* der nicht-dominierten Front Lösungen beschreiben, die für alle Zielsetzungen relativ gute Werte liefern.

Die Unvergleichbarkeit der gefundenen Lösungen wirft die Frage auf, wie Ergebnisse unterschiedlicher Algorithmen bewertet werden können. Auch für die Frage der Qualität der Lösungen aus mehreren Läufen eines einzelnen Algorithmus, der versucht die Pareto-Front anzunähern, muss es Gütemaße (*Metriken*) geben, da ansonsten keine Aussage getroffen werden kann.

Eine sehr intuitive Metrik für die Güte der Approximation der Pareto-Front ist das *Konvergenz-Maß*. Dabei wird der Abstand der einzelnen gefundenen Lösungen zu der Pareto-Front gemessen, aufsummiert und anschließend normiert, so dass sich der durchschnittliche Abstand der ermittelten nicht-dominierten Front zur Pareto-Front ergibt. Diese Metrik kann jedoch im Zusammenhang mit der Blackbox-Optimierung nicht verwendet werden, da die Pareto-Front nicht bestimmt werden kann. Aus diesem Grund wurden weitere spezielle Metriken entwickelt. Eine erfolgreiche Metrik der mehrkriteriellen Optimierung ist die *S-Metrik* von Zitzler und Thiele [44].

Die *S*-Metrik beschreibt das von der nicht-dominierten Front *dominierte Hypervolumen*.

Dazu wird ein *Referenzpunkt*<sup>15</sup> benötigt, der zusammen mit einem Punkt der nicht-dominierten Front einen Hyperkubus aufspannt, für den das Hypervolumen berechnet wird. Werden die so für jeden Punkt der nicht-dominierten Front definierten Hyperkuben vereinigt, beschreiben sie die Fläche, die von der nicht-dominierten Front bezüglich des Referenzpunkts dominiert wird. Abbildung 2.7 zeigt das Beispiel einer Pareto-Front (rote Kurve) und der ermittelten nicht-dominierten Front. Die graue Fläche zwischen den Lösungen der nicht-dominierten Front und dem Referenzpunkt  $y_{ref}$  beschreibt das dominierte Hypervolumen und damit die  $\mathcal{S}$ -Metrik.



**Abbildung 2.7:** Beispiel einer angenäherten Pareto-Front. Die hell- und dunkelgrauen Flächen beschreiben den  $\mathcal{S}$ -Metrik Wert der nicht-dominierten Front bezüglich des Referenzpunkts  $y_{ref}$ . Die dunklen Rechtecke sind die einzelnen, exklusiven Beiträge  $\Delta_y$  der Punkte bezüglich des Referenzpunkts  $y_{ref}$ .

Der bisherige Sachverhalt kann wie folgt formalisiert werden:

**2.2.9 Definition ( $\mathcal{S}$ -Metrik).** Sei  $\mathcal{L}$  das *Lebesgue Maß*,  $y_{ref} \in \mathbb{R}^n$  der verwendete Referenzpunkt und  $\mathcal{PF} = \{y_1, \dots, y_k\} \subseteq \mathbb{R}^n$  die Pareto-Front bestehend aus  $k$  Punkten. Dann ist die  $\mathcal{S}$ -Metrik definiert durch

$$\mathcal{S}(\mathcal{PF}, y_{ref}) := \mathcal{L} \left( \bigcup_{y \in \mathcal{PF}} \{y' \mid y \prec y' \prec y_{ref}\} \right). \quad (2.50)$$

Aufgrund der Definition der  $\mathcal{S}$ -Metrik über die Vereinigung von Hyperkuben kann auch der Beitrag eines einzelnen Punkts der Pareto-Front zur  $\mathcal{S}$ -Metrik angegeben werden:

<sup>15</sup>Der Referenzpunkt muss von allen Punkten der nicht-dominierten Front dominiert werden.

**2.2.10 Definition ( $\mathcal{S}$ -Metrik Beitrag).** *Der  $\mathcal{S}$ -Metrik Beitrag eines Punkts  $\hat{y} \in \mathcal{PF}$  der Pareto-Front beträgt die Differenz der  $\mathcal{S}$ -Metrik über die gesamte Pareto-Front  $\mathcal{PF}$  und der Pareto-Front  $\mathcal{PF} \setminus \{\hat{y}\}$  ohne den Punkt  $\hat{y}$ .*

$$\Delta_{\hat{y}} = \mathcal{S}(\mathcal{PF}, y_{ref}) - \mathcal{S}(\mathcal{PF} \setminus \{\hat{y}\}, y_{ref}) \quad (2.51)$$

Der Beitrag eines Punkts  $\hat{y}$  zur  $\mathcal{S}$ -Metrik ist in der Abbildung 2.7 dargestellt. Die gesamte graue Fläche bestehend aus sämtlichen hellen und dunklen Rechtecken bildet den Wert der  $\mathcal{S}$ -Metrik. Die dunklen Flächen sind die exklusiven  $\mathcal{S}$ -Metrik Beiträge  $\Delta_y$  aller  $y \in \mathcal{PF}$ . Entscheidend bei der Berechnung der  $\mathcal{S}$ -Metrik ist die Wahl eines geeigneten Referenzpunkts: Dieser sollte immer nach einem festen Schema gewählt werden, da sowohl der gesamte  $\mathcal{S}$ -Metrik Wert als auch die  $\mathcal{S}$ -Metrik Beiträge  $\Delta_y$  der Ränder stark von  $y_{ref}$  abhängen. Die Qualität der  $\mathcal{S}$ -Metrik als Gütemaß wurde von Fleischer [18] nachgewiesen: Die Maximierung der  $\mathcal{S}$ -Metrik in einem endlichen Suchraum zu einem gegebenen Referenzpunkt entspricht dem Finden der Pareto-Front.

## 2.2.2 Restriktionen im Definitionsbereich

Bei der Definition des globalen Optimums wurde die Zielfunktion als  $f : M \subseteq D_f \subseteq \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R}$  definiert. Der Definitionsbereich einer Zielfunktion ist dementsprechend eine Teilmenge des  $\mathbb{R}^n$ . Jedoch ist der zulässige Bereich und damit das Urbild nicht unbedingt der gesamte Definitionsbereich  $D_f$ , sondern der zulässige Bereich kann wiederum eine Teilmenge des Definitionsbereichs sein. Diese Situation kann mehrere Ursachen haben.

Zum Einen kann eine bestimmte Konstellation von Parametern bei der Optimierung naturwissenschaftlicher Problemstellungen physikalisch einfach nicht möglich sein, obwohl jeder Parameter für sich noch innerhalb seines gültigen Bereichs liegt. Zum Anderen können auch bestimmte Bereiche des Definitionsbereichs explizit von der Problemstellung ausgeschlossen werden, wenn diese z.B. extrem teuer zu realisieren sind oder bereits bekannt ist, dass diese Kombination eine Maschine fehleranfälliger werden lässt.

Entsprechend gibt es viele Möglichkeiten mit diesen unterschiedlichen Existenzgründen des eingeschränkten Definitionsbereichs umzugehen, welche sich in der Detailausführung stark unterscheiden können. Zwei dieser Möglichkeiten werden nachfolgend betrachtet. Ihnen ist gemein, dass der Zielfunktionswert an einer Stelle  $x$  durch einen zusätzlichen *Strafterm* modifiziert wird.

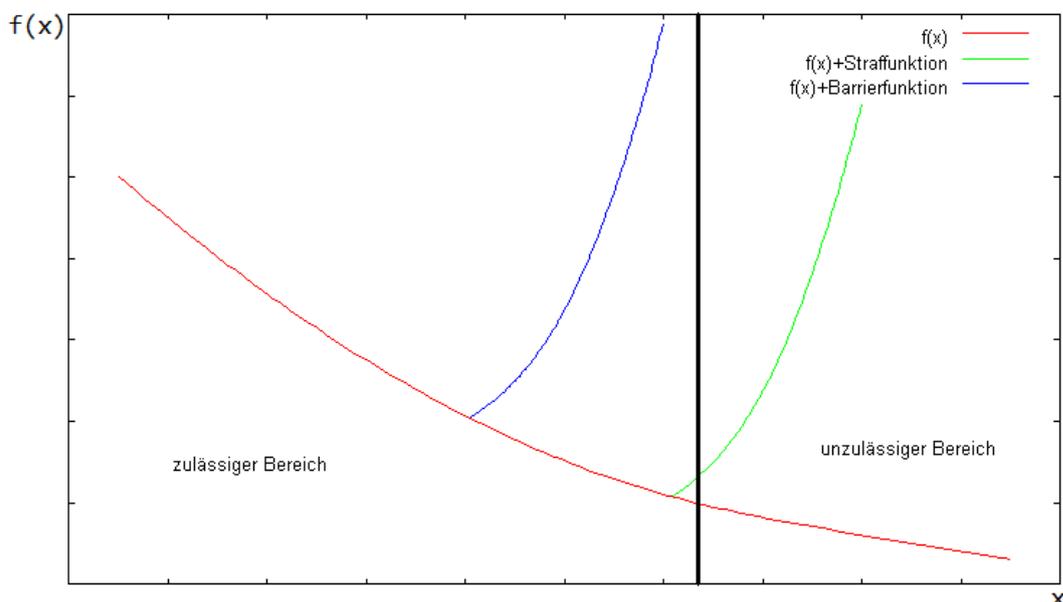
### 2.2.2.1 Straffunktionen

Sind bestimmte Gebiete des Definitionsbereichs  $D_f$  unerwünscht, aber nicht vollständig unmöglich zu realisieren, dann werden in der Regel Straffunktionen [42] verwendet. Bei

Strafffunktionen wird eine zweite Funktion  $S(x)$  definiert und zum Zielfunktionswert addiert<sup>16</sup>:

$$f^*(x) = f(x) + S(x) \text{ mit } S(x) = \begin{cases} 0, & \text{wenn } x \in M, \\ s(x), & \text{sonst.} \end{cases} \quad (2.52)$$

Die Wahl der Funktion  $s(x)$  ist hierbei entscheidend und variiert je nach Problemstellung. Sind Restriktionen, die den Definitionsbereich  $D_f$  beschneiden, mit Puffern gewählt oder in der Konsequenz so gering, dass die Ränder des unzulässigen Bereichs noch akzeptabel sind, dann wird für  $s(x)$  eine Funktion gewählt die langsam ansteigt und somit einen „schwammigen“ Bereich am Rand des zulässigen Bereichs erzeugt. Sind die Restriktionen stärker aufzufassen, so wird eine Funktion  $s(x)$  gewählt, die schnell ansteigt. Abbildung 2.8 soll dieses Vorgehen visualisieren.



**Abbildung 2.8:** Beispiel zur Unterscheidung von Straf- und Barrierenfunktionen: Strafffunktionen erlauben das Betreten des unzulässigen Bereichs und bestrafen dieses nur; Barrierenfunktionen erhöhen den Zielfunktionswert bereits im Vorfeld so stark, dass der unzulässige Bereich ausgeschlossen wird.

### 2.2.2.2 Barrierenfunktionen

Barrierenfunktionen verwenden genau wie die Strafffunktionen einen Strafterm, der zum Zielfunktionswert addiert wird. Gegenüber den Strafffunktionen wird der Strafterm aber bereits innerhalb des zulässigen Bereichs aktiv und wird mit der Annäherung an die Aktivierung einer Restriktion erhöht. Dabei soll bereits frühzeitig verhindert werden, dass das Optimierungsverfahren in einen Bereich hineinläuft, in dem eine Restriktion verletzt wird.

<sup>16</sup>Im Allgemeinen können Zielfunktion und Strafterm beliebig verrechnet werden.

Es wird eine Barriere aufgebaut.

Die Wahl der Steigung des Strafterms  $s(x)$  ist davon abhängig, wie wahrscheinlich eine Lösung nahe des unzulässigen Bereichs ist und wie stark der Optimierer von diesem Bereich abgestoßen werden soll. In der Abbildung 2.8 ist schematisch die Verwendung einer Barrierefunktion dargestellt.

Große Unterschiede treten bei der Verwendung von Straf- und Barrierefunktionen vor allem dann auf, wenn das Optimierungsverfahren trotzdem im ungültigen Bereich landet. Dabei reichen die Strategien vom Abbruch der Optimierung über Reperaturversuche der gefundenen Lösung bis zum vollständigen Verwerfen des Punkts und Ermittlung einer Alternative.

### 2.2.3 Evolutionäre Algorithmen

Eine weit verbreitete Technik zur Lösung von Optimierungsproblemen sind *evolutionäre Algorithmen*. Die *Evolution* wurde erstmals von Charles Darwin<sup>17</sup> im Jahr 1859 in seinem Werk „*Die Entstehung der Arten*“ beschrieben. Seit 1960 existiert mit der Bionik ein eigener Wissenschaftszweig, der technische Probleme mit Hilfe von Vorbildern aus der Natur löst. Eines der Erkenntnisse dabei ist, dass die natürliche Evolution Milliarden von Jahren Zeit hatte, gute Lösungen für bestimmte Problemstellungen zu entwickeln [33]. Ergo muss es auch möglich sein, gute Lösungen durch eine simulierte Evolution zu gewinnen. Algorithmen, die diesen Prozess simulieren, heißen *evolutionäre Algorithmen (EA)*.

Während der Evolution werden immer wieder neue Nachkommen, *Individuen* genannt, erzeugt, die durch gelegentliche *Mutationen* veränderte Überlebenschancen, *Fitness* genannt, in ihrer Umwelt aufweisen. Dabei sortiert die Umwelt die Individuen mit geringer Fitness aus, was von Darwin als „*Survival of the fittest*“ bezeichnet wurde. Je nach der Fortpflanzungsart der betrachteten Spezies wird bei der Erzeugung der neuen Individuen die *Rekombination* angewandt, sofern an der Entstehung des Nachkommens mehr als ein Elter beteiligt ist. Die Gesamtheit der betrachteten Spezies wird *Population* genannt und eine populationsübergreifende *Kreuzung* ist in der Regel nicht möglich. Diese Begriffe aus der Natur werden wie folgt auf die simulierte Evolution übertragen:

- **Individuum:** Das Lebewesen in der natürlichen Evolution entspricht einem Punkt  $x$  im Definitionsbereich  $D_f$  des betrachteten Optimierungsproblems. Als Fitness eines Individuums wird das Ergebnis der Zielfunktionsauswertung  $f(x)$  verwendet. Die Qualität einer Lösung beschreibt also auch die Qualität des Individuums. Diese Beschreibung kann noch kodiert werden, ein Zusammenhang ist hier aber zwingend und kann auch in Form von Anforderungen an die Kodierung formuliert werden [42].

---

<sup>17</sup>Charles Robert Darwin (12.02.1809 - 19.04.1882) [8] war ein britischer Naturforscher und der Erfinder der Evolutionstheorie.

- **Population:** Die Population besteht aus allen existierenden Individuen und kann ihre Größe ändern. Dies ist in der Natur auch üblich, während der Simulation aber eher unüblich.
- **Elternselektion:** Wird eine Fortpflanzung mit mir mehr als einem Elter<sup>18</sup> simuliert, wie es z.B. in der Natur bei der sexuellen Fortpflanzung geschieht, wird in der Elternselektion festgelegt, welche Eltern zusammenfinden. Weiterhin wird an dieser Stelle festgelegt, wie viele Nachkommen in dieser *Generation* erzeugt werden. Wird eine asexuelle Fortpflanzung mit nur einem Elter und einem Nachkommen simuliert, entfällt die Elternselektion.
- **Rekombination:** Die Rekombination verbindet die Eigenschaften der Elter-Individuen zu einem neuen Individuum, so wie in der Natur das Kind einige Eigenschaften seiner Eltern erbt.
- **Mutation:** Die in der Natur zufällig auftretenden Mutationen werden in der Simulation durch Pseudozufallszahlen eines geeigneten Pseudozufallszahlengenerators erzeugt. Mit welcher Verteilung die Pseudozufallszahlen erzeugt werden und wie diese die Entstehung des neuen Individuums beeinflussen, wird im Mutationsoperator definiert. Die Mutation kann auch die Rekombination selbst beeinflussen.
- **Umweltselektion:** Am Ende entscheidet die Umwelt darüber, ob ein Nachkomme überlebt oder nicht. Die Idee der Umweltselektion wird auf die Population angewandt, indem anhand der Fitness selektiert wird. Hierbei wird zwischen der Plus- (+) und der Komma- (,) Selektion unterschieden. Bei der Komma-Selektion gehen nur die  $\mu$  besten Nachkommen in die Population der nächsten Generation ein. Gute Eltern gehen dabei in jeder Generation wieder verloren. Bei der Plus-Selektion werden auch die Eltern berücksichtigt, so dass ein dominantes Individuum die Evolution überdauern kann. Ein dominantes Individuum kann jedoch die Population von Beginn an in einem lokalen Optimum festhalten. Eine Lösung, die die Vorteile der Plus- und der Komma-Selektion vereint, ist die  $\kappa$ -Selektion [39]. Dabei beschreibt  $\kappa$  das maximale Alter eines Individuums und verhindert so, dass einzelne dominante Individuen die Evolution über die gesamte Zeit an einer Stelle im Suchraum aufhalten. Entsprechend kann die Komma-Selektion als Spezialfall der  $\kappa$ -Selektion mit  $\kappa = 1$  aufgefasst werden.

Die detaillierte Aufzählung in der obigen Reihenfolge verdeutlicht dann auch unmittelbar die Funktionsweise eines evolutionären Algorithmus, welche nachfolgend in Pseudocode 2.1 angegeben ist.

Häufig wird in der Abbruchbedingung noch eine maximale Anzahl von Generationen mitgeführt, die eine Terminierung bei fehlender Konvergenz sicherstellt.

---

<sup>18</sup>Bei der Simulation sind tatsächlich beliebig viele Elternteile möglich.

---

**Algorithmus 2.1** Schema für einen evolutionären Algorithmus

---

```

1: Initialisiere die Population, berechne die Fitness
2: while Abbruchbedingung ist nicht erfüllt do
3:   SELEKTIERE die Eltern
4:   REKOMBINIERE die Eltern zu neuen Kindern
5:   MUTIERE die Kinder
6:   BERECHNE Fitness der Kinder
7:   SELEKTIERE die Individuen der nächsten Generation
8: end while

```

---

Ein Teilgebiet der evolutionären Algorithmen sind die Evolutionsstrategien. Diese beruhen auf der These, dass nicht nur die Individuen der Evolution unterworfen sind, sondern auch die Evolution selbst der Evolution unterworfen ist. So wurden während der Entstehung der Erde verbesserte Evolutionsstrategien entwickelt, die ein schnelleres Voranschreiten ermöglichten, z.B. der Übergang von der Replikation von Einzellern hin zur geschlechtlichen Fortpflanzung. Wird diese Idee auf die bisherigen Ausführungen zu den evolutionären Algorithmen übertragen, bedeutet dies, dass der Algorithmus seine Schrittweiten dynamisch dem Aussehen der Zielfunktion an der betrachteten Stelle anpasst. Rechenberg formulierte dazu die 1/5-Regel. Wenn weniger als 1/5 der Nachkommen besser als ihre Eltern sind, so sollte die Schrittweite verringert werden, da der interessante Bereich, in dem noch Verbesserungen erzielt werden können, offensichtlich schrumpft. Sind hingegen mehr als 1/5 der Nachkommen besser als die Elterngeneration, so soll die Schrittweite erhöht werden, da in der betrachteten Umgebung noch viele Fortschritte zu beobachten sind, der interessante Bereich also noch groß ist. Viele moderne Verfahren verwenden einen ähnlichen Mechanismus um ihre Schrittweiten anzupassen.

Die Integration der Evolutionsstrategie in die evolutionären Algorithmen geschieht über die Ergänzung der Individuen um *Strategieparameter* wie z.B. die Schrittweite. Auf diese Weise wird bei der Rekombination und Mutation automatisch eine angepasste Evolutionsstrategie erzeugt, indem davon Gebrauch gemacht wird, dass Individuen mit einem besseren Fitnesswert mit hoher Wahrscheinlichkeit in Richtung des Optimums weisen.

Durch die Evolution der Strategie kommt dem Mutationsoperator eine besondere Bedeutung zu, da nun sichergestellt werden muss, dass trotz der Mutation ein geeignetes Voranschreiten im Suchraum stattfindet. Hierzu werden im Wesentlichen vier Anforderungen an den Mutationsoperator [7] gestellt:

- *Erreichbarkeit:*

Jeder Punkt des Suchraums muss in endlicher Zeit erreichbar sein. Dies ist eine notwendige Bedingung, denn wenn nicht jeder Punkt des Suchraums prinzipiell erreichbar

bar ist, kann das Optimum nicht gefunden werden, sofern es an einer unerreichbaren Stelle verborgen liegt.

- *Skalierbarkeit:*  
Der Grad der Mutation muss variabel sein, da z.B. bei Evolutionsstrategien die Schrittweiten angepasst werden müssen um die Besonderheiten der Fitnessfunktion zu lernen.
- *Unvoreingenommenheit:*  
Der Mutationsoperator soll keine Richtung bevorzugen. Um dies zu gewährleisten, werden neue Individuen meist gauss- oder normalverteilt im Parameterraum generiert.
- *Symmetrie:*  
Der Erwartungswert der Schrittweite nur unter Berücksichtigung der Verteilung soll 0 betragen.

Dabei sind die ersten beiden Anforderungen von essentieller Bedeutung, da der Algorithmus das Optimum in einem nicht erreichbaren Teil des Parameterraums nicht finden kann, über dieses immer hinweg springt oder bei multimodalen Funktionen in lokalen Optima stecken bleibt. Die letzten beiden Anforderungen können mittels Expertenwissen aufgeweicht werden, wenn z.B. eine bestimmte Suchrichtung bereits durch die Problemstellung deutlich als vorteilhaft zu erkennen ist.

Der moderne Begriff der evolutionären Algorithmen umfasst verschiedene Ursprünge; Durch verschiedene Anwendungsgebiete wurden unterschiedliche Konzepte entwickelt. Die Evolutionsstrategien wurden von Schwefel [37, 38] und Rechenberg [33] entwickelt. Weitere Ursprünge sind die evolutionäre Programmierung nach Fogel [19] sowie die genetischen Algorithmen von Holland [28]. Eine allgemeine Einführung kann Eiben und Smith [16] entnommen werden.

## 2.2.4 Verwendete Optimierungsverfahren

In diesem Kapitel werden die in der Diplomarbeit verwendeten Optimierungsverfahren vorgestellt und ihre Funktionsweise erläutert.

### 2.2.4.1 Quasi-Newton Verfahren

Das *Newton-Verfahren* ist ein Standardverfahren im Bereich der numerischen einkriteriellen Optimierung. Dabei soll das gesuchte Optimum durch iterative Bestimmung der Nullstellen

von an die Funktion angeschmiegten *Tangenten*<sup>19</sup> bzw. *Sekanten*<sup>20</sup> approximiert werden. In jedem Schritt wird dabei die Sekante der Zielfunktion an der Nullstelle der Sekante des vorherigen Schrittes gebildet, bis das Optimum gefunden oder eine Abbruchbedingung erreicht ist. Formal wird dieser Vorgang wie folgt beschrieben [34]:

**2.2.11 Definition (Newton-Verfahren).** *Gegeben sei eine nichtlineare Funktion<sup>21</sup>  $f : \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}$ , deren Nullstellen  $x^*$  nicht direkt bestimmt werden können. Um diese zu approximieren wird in jeder Iteration  $k$  eine lineare Modellfunktion*

$$l_k(x) = a_k + b_k x \approx f(x) \quad (2.53)$$

*verwendet, deren Nullstellen  $x_k^* = -a_k/b_k$  als Näherungen für die Nullstelle  $x^*$  von  $f$  verwendet werden. Unter der Annahme, dass  $x_k^*$  eine bessere Näherung für  $x^*$  ist als  $x^{(k)}$ , wird durch*

$$x^{(k+1)} = x^{(k)} - \frac{f(x^{(k)})}{f'(x^{(k)})} \quad \text{mit } k = 0, 1, 2, \dots \quad (2.54)$$

*eine Folge definiert, die gegen  $x^*$  konvergiert, wenn der Startwert im **Attraktionsbasin** von  $x^*$  liegt.*

Voraussetzung für die Verwendung des Newton-Verfahrens ist also die Kenntnis der Ableitung. Ist diese nicht gegeben, so kann nur das *Quasi-Newton-* bzw. *Sekanten-Verfahren* verwendet werden, bei dem die Ableitung durch einen Differenzenquotienten approximiert wird:

$$f'(x^{(k)}) \approx \frac{f(x^{(k)} + h_k) - f(x^{(k)})}{h_k} = d_k. \quad (2.55)$$

Dabei ist  $h_k$  die verwendete Schrittweite um den Differenzenquotienten zu bestimmen. Abbildung 2.9 zeigt ein Beispiel für drei Schritte während des Newton-Verfahrens. Zunächst wird an der Stelle  $x_n$  die Tangente (blau) gebildet. Deren Nullstelle  $x_{n+1}$  ist der Ausgangspunkt zur Bildung der Tangente (rot) im nächsten Iterationsschritt.  $x_{n+2}$  als Nullstelle der Tangente von  $x_{n+1}$  bildet dann wiederum den nächsten Iterationsschritt usw.

#### 2.2.4.2 Covariance Matrix Adaptation - Evolution Strategy

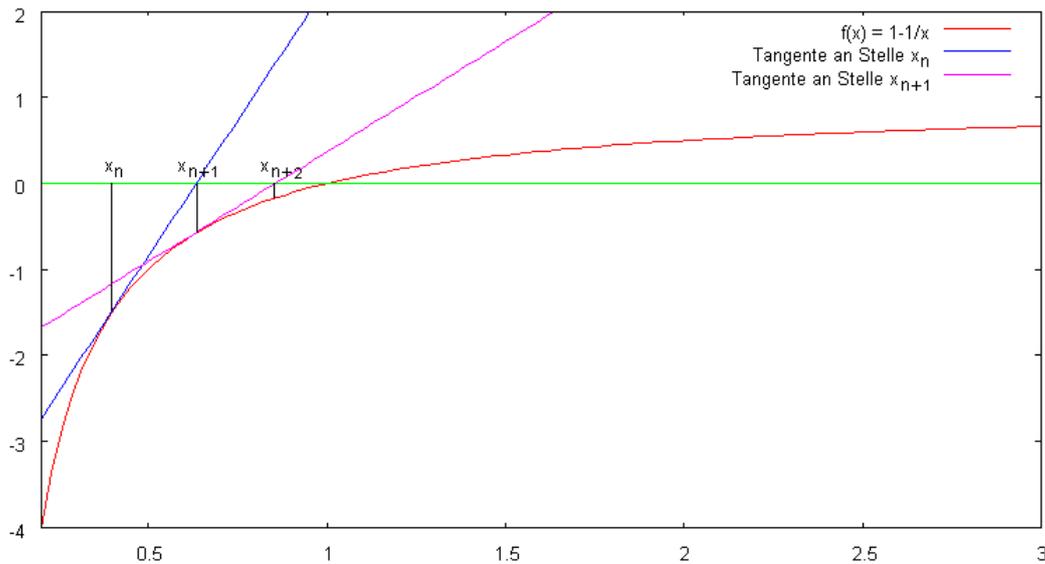
Die *Covariance Matrix Adaptation - Evolution Strategy (CMA-ES)* ist ein einkriterielles<sup>22</sup> Optimierungsverfahren, bei dem die Schrittweite in der Evolutionsstrategie aus der Fitnesslandschaft gelernt und verwendet wird, um das Fortschreiten der Fitnesslandschaft

<sup>19</sup>Siehe Bronstein [9] Seiten 170 ff.

<sup>20</sup>Siehe Bronstein [9] Seite 114. Nachfolgend wird nur noch der Begriff Sekante anstelle von Sekante bzw. Tangente verwendet.

<sup>21</sup>Zur Verdeutlichung des Verfahrens wird ohne Einschränkung der Allgemeinheit der Fall  $f : \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}$  dargestellt. Eine erweiterte Definition mit  $f : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R}^n$  und der dann verwendeten Ersatzfunktionen siehe Informatik-Handbuch [34], Seite 954 ff.

<sup>22</sup>Es existieren Erweiterungen des Verfahrens für die mehrkriterielle Verwendung, z.B von Igel [30].



**Abbildung 2.9:** Ausschnitt für drei Iterationen ( $n, n + 1, n + 2$ ) aus der Verwendung des Newton-Verfahrens auf einer Beispielfunktion. In der Iteration  $n$  wird an der Stelle  $x_n$  die Tangente gebildet. Die Nullstelle dieser Tangente an der Stelle  $x_{n+1}$  bildet in der Iteration  $n + 1$  die Basis für die neue Tangente, welche in  $n + 2$  weiter verwendet wird.

anzupassen. Dies geschieht, indem in jeder Iteration versucht wird, die *Hesse-Matrix*<sup>23</sup> für den Schwerpunkt der Population zu approximieren um die Abstiegsrichtung zu ermitteln. Die Evolution der Strategieparameter sorgt in Kombination mit dem *Evolutionsspfad*, gewonnen aus der Historie der bisherigen Bewegungen, für die Anpassung der Schrittweiten mit einem ähnlichen Ergebnis wie von Rechenberg mit der 1/5-Regel beschrieben wurde. Die Population in einem Iterationsschritt  $k$  wird aus der Umgebung des Schwerpunktes mittels einer parametrisierten Normalverteilung gezogen. Abbildung 2.10 zeigt die Form des resultierenden *Hyperellipsoiden* bei der Verwendung unterschiedlich parametrisierter Normalverteilungen basierend auf der Varianz und der *Identitätsmatrix*<sup>24</sup> (links), der *Diagonalmatrix*<sup>25</sup> (Mitte) und der *Kovarianzmatrix*<sup>26</sup> (rechts). Die Zusammenhänge werden nachfolgend detailliert beschrieben und zum Schluss in Pseudocode 2.2 dargestellt.

Bei der Initialisierung der CMA-ES wird der Evolutionsspfad und der Iterationszähler mit 0 vorbelegt sowie die Kovarianzmatrix mit der Identitätsmatrix. Sowohl der Startpunkt  $m$  als auch die initialen Schrittweiten müssen nach Hansen [26] problemspezifisch<sup>27</sup> vorgegeben werden. In jeder Iteration wird dann zunächst eine neue Population erzeugt.

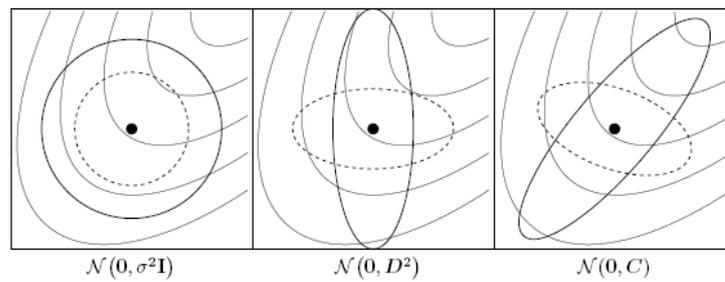
<sup>23</sup>Die Hesse-Matrix  $H(x)$  ist die Matrix der zweiten partiellen Ableitungen einer Funktion  $f$  an der Stelle  $x$  (siehe [9], Seite 585).

<sup>24</sup>Auch *Einheitsmatrix* genannt, siehe Bronstein [9] Seite 199.

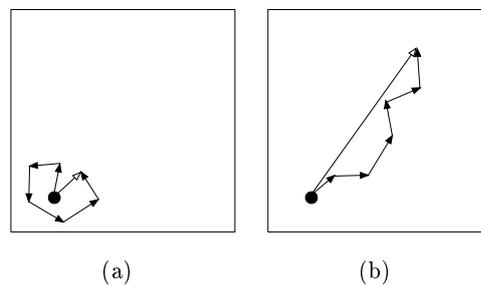
<sup>25</sup>Siehe Bronstein [9] Seite 198.

<sup>26</sup>Siehe Kapitel „Voraussetzungen“ im CMA-ES Tutorium [25].

<sup>27</sup>Zufällige Initialisierungen und Multistarts sind ebenfalls möglich.



**Abbildung 2.10:** Die Abbildung zeigt die resultierende Form der Hyperellipsoiden bei der Verwendung unterschiedlicher Parameter bei der Normalverteilung. Rechts ist die Form des Hyperellipsoiden dargestellt, aus dem die Individuen einer Generation gezogen werden. (Quelle: CMA-Tutorium [25].)



**Abbildung 2.11:** Beispiele für Evolutionspfade. In Beispiel (a) wird ein Optimum eingekreist, wodurch der Evolutionspfad über die letzten Schritte kurz ist. Beispiel (b) zeigt die Entstehung eines langen Evolutionspfads, da die Iterationen eindeutig einer Richtung folgen.

Bei der Erzeugung der Individuen für die jeweilige Generation werden  $k$  Individuen  $x_k$  als Stichprobe aus der multivariaten Normalverteilung  $\mathcal{N}(m^{(g)}, \sigma^2 C^{(g)})$  gezogen:

$$\mathcal{N}(m, C) \sim m + \mathcal{N}(0, C) \sim m + BDB^T \mathcal{N}(0, I) \sim m + BD \mathcal{N}(0, I). \quad (2.56)$$

Dabei wird ausgenutzt, dass  $C = B(D)^2 B^T$  die *Eigendekomposition*<sup>28</sup> von  $C$  ist. Mit  $\mathcal{N}(0, I)$  wird ein Ellipsoid wie in Abbildung 2.10 links beschrieben. Durch die Diagonalmatrix  $D$  wird die Normalverteilung gemäß der Achsen des Suchraums skaliert (siehe Abbildung 2.10 Mitte). Diese Eigenschaft ermöglicht die Verwendung der CMA-ES auch bei stark unterschiedlichen Skalen der einzelnen Dimensionen des Suchraums. Mit der *Orthogonalmatrix*  $B$  der *Eigenvektoren* von  $C$  wird der Ellipsoid, wie in Abbildung 2.10 rechts zu sehen, letztlich im Suchraum gemäß der bisher für  $C$  ermittelten Werte ausgerichtet. Die Selektion und Rekombination des Individuums (Schwerpunktes)  $m$  für die nächste Generation  $g$  geschieht in einem Schritt:

$$m^{(g+1)} = \sum_{i=1}^{\mu} w_i x_{i:\lambda}^{(g+1)}. \quad (2.57)$$

<sup>28</sup>Siehe Kapitel „Voraussetzungen“ im CMA-ES Tutorium [25]

Jedes Individuum einer Generation fließt also gewichtet in den Schwerpunkt der nächsten Generation ein. Zur Gewichtung werden die Individuen gemäß ihrer Güte sortiert, so dass gilt:

$$\sum_{i=1}^{\mu} w_i = 1, \quad w_1 \geq w_2 \geq \dots w_{\mu} > 0. \quad (2.58)$$

Zum Abschluss müssen noch die Strategieparameter der CMA-ES aktualisiert werden. Die Schrittweite  $\sigma$  benötigt die Länge des Evolutionspfads

$$p_{\sigma}^{(g+1)} = (1 - c_{\sigma})p_{\sigma}^{(g)} + \sqrt{c_{\sigma}(2 - c_{\sigma}\mu_{eff})} C^{-\frac{1}{2}} \frac{m^{(g+1)} - m^{(g)}}{\sigma^{(g)}} \quad (2.59)$$

zur Aktualisierung. Die Konstante  $c_{\sigma}$  beeinflusst die Lerngeschwindigkeit und wird bei der Initialisierung festgelegt, ebenso  $\mu_{eff}$  als die Varianz der Gewichtung. Durch die Berücksichtigung von  $C^{-\frac{1}{2}}$  in der Aktualisierung des Evolutionspfads  $p_{\sigma}$  wird das Lernen der Schrittweiten beschleunigt. Die Aktualisierung von  $\sigma$  erfolgt mittels

$$\sigma^{(g+1)} = \sigma^{(g)} \times \exp\left(\frac{c_{\sigma}}{d_{\sigma}} \left(\frac{\|p_{\sigma}\|}{E\|\mathcal{N}(0, I)\|} - 1\right)\right). \quad (2.60)$$

Der Parameter  $d_{\sigma}$  steuert die Veränderung der Schrittweiten und ist innerhalb des Algorithmus konstant. Zur Aktualisierung der Kovarianzmatrix mittels

$$C^{(g+1)} = (1 - c_{cov})C + \frac{c_{cov}}{\mu_{cov}}(p_c p_c^T + \delta(h_{\sigma})C) + c_{cov} \left(1 - \frac{1}{\mu_{cov}}\right) \sum_{i=1}^{\mu} w_i y_{i:\lambda} y_{i:\lambda}^T \quad (2.61)$$

wird eine weitere Variante des Evolutionspfads verwendet, der die Kovarianzmatrix vor zu großen Schrittweiten schützen soll:

$$p_c^{(g+1)} = (1 - c_c)p_c^{(g)} + h_{\sigma} \sqrt{c_c(2 - c_c)\mu_{eff}} \frac{m^{(g+1)} - m^{(g)}}{\sigma^{(g)}}, \quad (2.62)$$

wobei  $c_{cov}$  in Gleichung 2.61 die Lernrate der Kovarianzmatrix beschreibt. Der Parameter  $\mu_{cov}$  wird ebenfalls zu Beginn initialisiert und entspricht in der Standardeinstellung  $\mu_{eff}$ . Weiterhin ist  $h_{\sigma}$  eine *Indikatorfunktion* zur Drosselung der Lernrate und ist definiert als

$$h_{\sigma} = \begin{cases} 1, & \text{wenn } \frac{\|p_{\sigma}\|}{\sqrt{1 - (1 - c_{\sigma})^{2(g+1)}}} < (1, 4 + \frac{2}{n+1})E\|\mathcal{N}(0, I)\| \\ 0, & \text{sonst} \end{cases}. \quad (2.63)$$

Für sämtliche Lernparameter und Konstanten, die bereits zu Beginn bei der Initialisierung festgelegt werden, schlägt Hansen [25] Standardeinstellungen vor. Abschließend wird zur Übersicht der Ablauf der CMA-ES in Pseudocode 2.2 angegeben.

### 2.2.4.3 $\mathcal{S}$ -Metric Selection - Evolutionary Multi-Objective Algorithm

Der  *$\mathcal{S}$ -Metric Selection - Evolutionary Multi-Objective Algorithm (SMS-EMOA)* ist ein mehrkriterielles Optimierungsverfahren entwickelt an der TU Dortmund von Nicola Beume et al. [6, 5]. Der SMS-EMOA gehört zur Klasse der  $(\mu + 1)$  Steady-State-Evolutionary

**Algorithmus 2.2** Schema der CMA-ES

---

Parameter festlegen (Lernraten  $c_c, c_\sigma, c_{cov}$ , Gewichte  $w_{i=1,\dots,\mu}$ , etc.)

Initialisierung:

    Evolutionspfade:  $p_c \leftarrow 0, p_\sigma \leftarrow 0$

    Kovarianzmatrix mit Identitätsmatrix:  $C \leftarrow I$

    Generationenzähler:  $g \leftarrow 0$

Startpunkt  $m$  und Schrittweite  $\sigma \in \mathbb{R}_+$  je nach Problem voreinstellen

**while** Abbruchbedingung ist nicht erfüllt **do**

$g \leftarrow g + 1$

    Erzeuge  $k$  Nachkommen mit  $x_k = \mathcal{N}(m, \sigma^2 C)$

    Selektion und Rekombination:

        Nachkommen sortieren und Gewichte zuweisen

$m$  als gewichtete Summe der Nachkommen aktualisieren

    Strategieparameter aktualisieren

        Schrittweiten  $\sigma$  mittels Evolutionspfad  $p_\sigma$  aktualisieren

        Kovarianzmatrix  $C$  mittels Evolutionspfad  $p_c$  aktualisieren

**end while**

---

Algorithmus<sup>29</sup>, da in jeder Generation nur ein neues Individuum erzeugt wird, welches maximal einen Elter in der Population (siehe Kapitel 2.2.1.2) austauscht.

Die Idee des SMS-EMOA besteht darin, das Gütemaß  $\mathcal{S}$ -Metrik, welches für die Qualitätsbestimmung der nicht-dominierten Front verwendet wird, direkt zu optimieren. Fleischer [18] konnte zeigen, dass eine Maximierung der  $\mathcal{S}$ -Metrik einer Konvergenz an die Pareto-Front entspricht. Zur Selektion und Rekombination der Eltern zu einem Nachkommen können verschiedene Methoden eingesetzt werden, zum Beispiel *Simulated Binary Crossover (SBX)* [13]. Die Wahl des richtigen Rekombinationsoperators kann von der Problemstellung abhängen und wird hier nicht weiter betrachtet.

Die Umweltselektion zur Maximierung der  $\mathcal{S}$ -Metrik des SMS-EMOA ist das kennzeichnende Merkmal dieses Algorithmus. Sie basiert auf zwei Methoden: Dem *non-dominated sorting*, wie es auch bei anderen EMOA verwendet wird, und dem  $\mathcal{S}$ -Metrik Beitrag eines Individuums. Da die Berechnung der  $\mathcal{S}$ -Metrik zeitaufwendig ist, wird zunächst mit dem Algorithmus *fast non-dominated sorting* [14] die Population inklusive des Nachkommens in eine Menge von Fronten  $\mathcal{R}_i$  gemäß der Anzahl der sie dominierenden Punkte der Population eingeteilt. Dazu wird die *Anzahl der dominierenden Punkte*  $d(s, Q)$  für einen Punkt  $s$  und ein Pareto-Set  $Q$  wie folgt definiert:

$$d(s, Q) := |\{y \in Q | y \prec s\}|. \quad (2.64)$$

<sup>29</sup>Für eine Übersicht der Kategorisierungen siehe [42].

Solange nicht alle Punkte in der gleichen, von keiner anderen Front dominierten Front  $\mathcal{R}_1$  liegen, wird immer ein zufällig aus der am meisten dominierten Front ausgewähltes Individuum verworfen<sup>30</sup>. Liegen alle Individuen in der nicht-dominierten Front  $\mathcal{R}_1$ , so wird die  $\mathcal{S}$ -Metrik und der Beitrag aller  $\mu + 1$  existierenden Individuen berechnet und das Individuum mit dem geringsten Beitrag wird verworfen. Durch diese Selektion ist gewährleistet, dass der Wert der  $\mathcal{S}$ -Metrik des Pareto-Sets nicht schrumpfen kann. Es gilt die Invariante

$$\mathcal{S}(g) \leq \mathcal{S}(g + 1). \quad (2.65)$$

Der Operator dieser Art der Umweltselektion wird von den Autoren „Reduce“ genannt, welcher sich wie folgt in den Algorithmus des SMS-EMOA einbettet:

---

**Algorithmus 2.3** Schema des SMS-EMOA

---

```

 $P_0 \leftarrow \text{init}(), g \leftarrow 0$ 
while Abbruchbedingung ist nicht erfüllt do
   $q_{g+1} \leftarrow \text{generate}(P_g)$ 
   $\{\mathcal{R}_1, \dots, \mathcal{R}_\rho\} \leftarrow \text{non-dominated sort}(P_g \cup \{q_{g+1}\})$ 
  if  $\rho > 1$  then
     $r \leftarrow \text{argmax}_{s \in \mathcal{R}_\rho} [d(s, P_g \cup \{q_{g+1}\})]$ 
  else
     $r \leftarrow \text{argmin}_{s \in \mathcal{R}_1} [\Delta_{\mathcal{S}}(s, \mathcal{R}_1)]$ 
  end if
   $P_{g+1} \leftarrow P_g \cup \{q_{g+1}\} \setminus \{r\}$ 
   $g \leftarrow g + 1$ 
end while

```

---

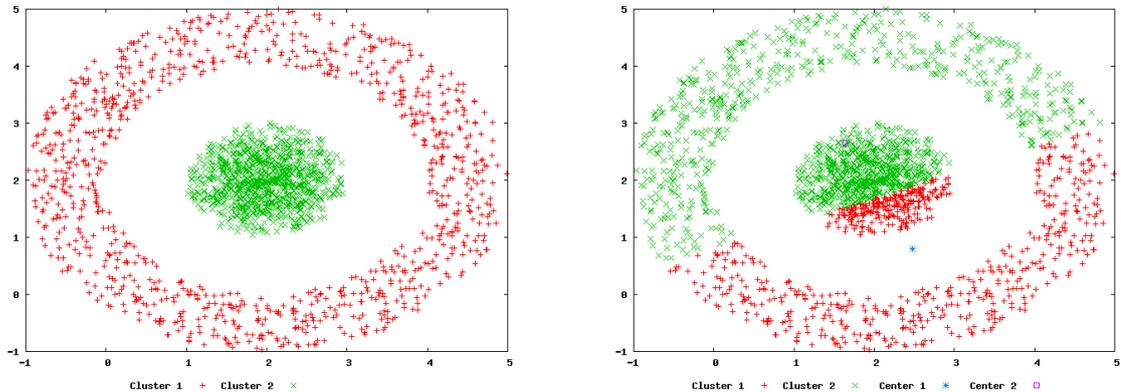
## 2.3 Clustering

Das *Clustering* wird dem Gebiet des *Data Mining* zugeordnet und beschreibt eine Klasse von unüberwachten Lernverfahren. Ziel des Clusterings ist es, möglichst natürliche Gruppierungen von Daten zu finden. Im Gegensatz zur *Klassifikation* müssen die Gruppierungen jedoch ebenfalls aus den Daten heraus gelesen werden [2]. Das Feld des Clustering besteht aus sehr vielen verschiedenen Methoden, die bestimmte Arten von Clustern besser oder schlechter erkennen können, sodass das eingesetzte Verfahren nach der Beschaffenheit der Daten gewählt werden muss. Abbildung 2.12 verdeutlicht dies: Das *DB-Scan* [17] Verfahren erkennt die Cluster korrekt während das bekannteste Clusterverfahren *k-Means* scheitert. Ein weiteres Entscheidungskriterium für das zu wählende Verfahren ist, ob die Anzahl der Cluster bereits im Vorfeld bekannt ist. So muss z.B. bei dem Clusteralgorithmus *k-Means*

---

<sup>30</sup>Die Autoren haben verschiedene Varianten des Reduce-Operators vorgestellt. Der hier beschriebene und verwendete Operator wird in [6] in Abschnitt 2.2 als schnelle Alternative vorgestellt.

die Anzahl der Cluster im Vorfeld festgelegt werden. Eine Einführung verschiedener Clusterverfahren und ihrer Besonderheiten inklusive Beispielen bietet das Buch von Hastie, Tibshirani und Friedman [27].



**Abbildung 2.12:** Die beiden Grafiken zeigen die Ergebnisse verschiedener Clusterverfahren. Das Verfahren *DB-Scan* (links) erkennt beide Cluster korrekt während *k-Means* den inneren Cluster nicht erkennt und stattdessen einen Schnitt quer durch beide Cluster legt.

Für alle Clusterverfahren wird ein Abstandsmaß benötigt, welches die Ähnlichkeit zwischen zwei Punkten beschreibt. Ein Punkt wird durch einen Vektor mit  $p$  Komponenten repräsentiert, in dem jede Komponente einem Merkmal (*Attribut*) entspricht. Im Allgemeinen können nicht alle Formen von Abständen in einer Abstandsmatrix notiert werden, z.B. wenn die Abstände asymmetrisch sind. Solche Fälle sollen hier nicht weiter betrachtet werden.

Sei  $D$  die  $N \times N$  Entfernungsmatrix mit den Abständen  $D(x_i, x_{i'}) = \sum_{j=1}^p d_j(x_{ij}, x_{i'j})$  zwischen den einzelnen  $N$  Datenpunkten. Das am meisten eingesetzte Abstandsmaß ist der quadratische Abstand  $d_j(x_{ij}, x_{i'j}) = (x_{ij} - x_{i'j})^2$ . Es existiert eine Reihe weiterer Abstandsmaße, z.B. die *Mahalanobis-Distanz* [27], insbesondere auch für nicht-quantitative Attribute.

Bei Clusterverfahren mit einer fest vorgegebenen Anzahl von Clustern muss eine Verteilung der Punkte auf die Cluster gefunden werden, so dass die Summe der Abstände der Datenpunkte zu dem Clusterzentrum, dem sie zugeordnet sind, minimal ist. Clusteralgorithmen für  $k$  vorgegebene Cluster lösen also Optimierungsprobleme. Clusterverfahren mit einer dynamischen Anzahl von Clustern bilden die Cluster nur über die Abstände der einzelnen Datenpunkte und Cluster zueinander, ohne dabei Fehlerterme zu berücksichtigen. Nachfolgend soll das agglomerative *Single Linkage Clustering* beschrieben werden, welches ein sehr einfaches Standard-Clusterverfahren darstellt.

Bei dem *Single Linkage Clustering* werden  $N - 1$  Schritte durchgeführt. Jeder Datenpunkt wird dabei als eigener Cluster initialisiert. Nun werden in jeder Iteration die beiden Cluster zu einem neuen Cluster verschmolzen, deren nächste Datenpunkte den geringsten Abstand

zueinander aufweisen. Nach  $N - 1$  Schritten sind alle Datenpunkte in einem Cluster zusammengefasst, der aus einer Hierarchie von Clustern besteht, welche in den einzelnen Iterationen entstanden sind. Aus dieser Hierarchie lassen sich die Cluster herauslesen, die zu einer bestimmten Iteration existierten oder aber diejenigen, mit welchen ein bestimmter Abstand zwischen den Clustern überschritten wurde.

---

**Algorithmus 2.4** Schema des Single Linkage Clustering
 

---

initialisiere Clustermenge  $G$  mit den  $N$  Datenpunkten als Cluster

berechne Entfernungsmatrix  $D$

**for**  $x = 1$  to  $N - 1$  **do**

    suche Cluster  $x_i$  und  $x_j$  mit  $\min d_{ij}$  in  $G$  unter Verwendung von  $D$

$G \leftarrow G \setminus \{x_i, x_j\} \cup \{x_{ij}\}$

**end for**

---

## 2.4 Visualisierung hoch-dimensionaler Daten

Bei der Visualisierung von Daten wird versucht, viele Informationen möglichst einfach verständlich und aussagekräftig darzustellen. Jacques Bertin versuchte bereits in der Mitte des letzten Jahrhunderts die damals bekannten Visualisierungsmöglichkeiten zu kategorisieren. Dabei untersuchte er, welche Darstellungsformen für welche Daten geeignet sind und worauf bei den einzelnen Darstellungen geachtet werden muss [3]. Heute sind Visualisierungen hoch-dimensionaler Daten insbesondere in den Natur- und Ingenieurwissenschaften von besonderem Interesse. Leider sind diese Darstellungen oftmals nicht intuitiv verständlich, so dass die in der vorliegenden Diplomarbeit verwendeten Visualisierungen nachfolgend kurz erläutert werden.

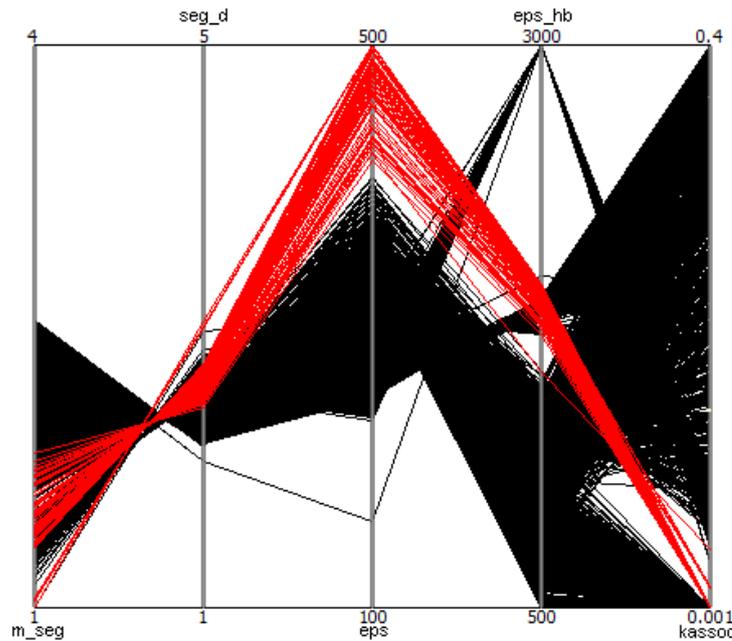
### 2.4.1 Parallelkoordinaten

In einem *kartesischen Koordinatensystem* können nur drei Dimensionen dargestellt werden, bei der Hinzunahme von Farben sogar vier Dimensionen. Werden weiterhin noch Symbole anstelle einfacher Punkte im Raum verwendet, so beträgt die maximale Anzahl an Dimensionen fünf. Von einer Verwendung dieser Art rät Bertin in seiner *graphischen Semiologie* [3] dringend ab, da die Darstellung so vieler Detail-Informationen mit solch unterschiedlichen stilistischen Mitteln die menschliche Wahrnehmung überfordert und somit das Erkennen von Mustern verhindert.

Mit den *Parallelkoordinaten* [36] wird eine Darstellungsform erreicht, bei der die Anzahl der Dimensionen nicht entscheidend für die Lesbarkeit der Darstellung ist. Jede darzustellende Dimension wird bei den Parallelkoordinaten als eine separate senkrechte Achse dargestellt, deren Wertebereich dem der Dimension entspricht. Auf diese Weise sind stark

unterschiedliche Skalierungen in den einzelnen Dimensionen direkt darstellbar, die exakten Werte können allerdings nicht direkt aus den Parallelkoordinaten abgelesen werden. Ein einzelner Datenpunkt wird dabei als ein Streckenzug über alle Achsen dargestellt und identische Datenpunkte werden auf den selben Streckenzug abgebildet.

In Abbildung 2.13 wird das Ergebnis des Gittertests für Wasser dargestellt. Die Ergebnisse sind gefiltert und berücksichtigen nur Ergebnisse mit einer Güte von mindestens 10% (siehe Kapitel 3.1.2 „Gültige und triviale Lösungen“).



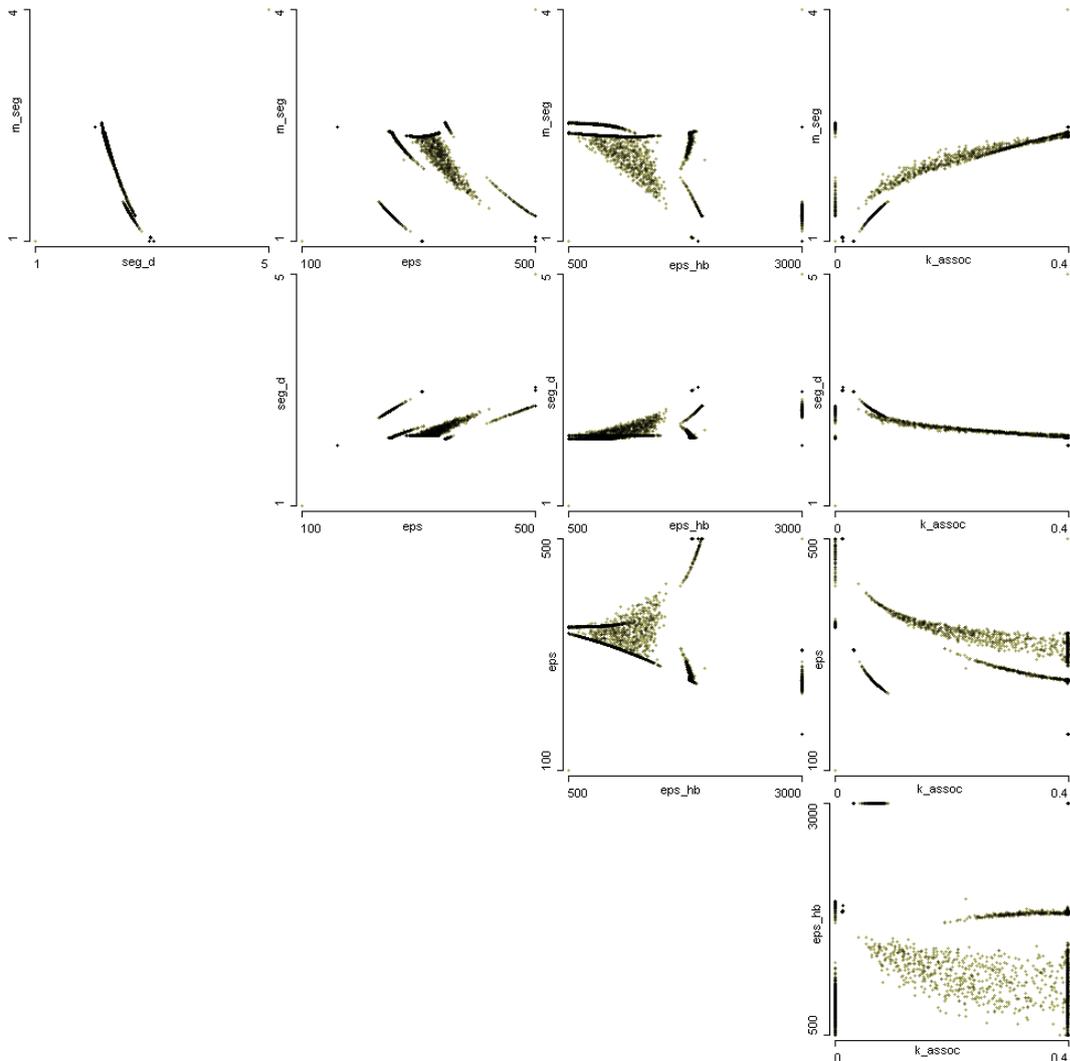
**Abbildung 2.13:** Parallelkoordinaten für das Ergebnis des Gittertests für Wasser mit einer Güte besser als 10%. Deutlich erkennbar sind die beiden Optima sowie deren Attraktionsbasin für den Parameter *Eps*.

Weitere Möglichkeiten zur Exploration von Parallelkoordinaten stellt die farbliche Hervorhebung der Schwerpunkte der Koordinatenzüge dar. So ist in dem obigen Beispiel für den Parameter *Eps* ein Optimum mit kleinem Attraktionsbasin (rot) sowie ein Optimum mit einem sehr großen Attraktionsbasin (schwarz) zu erkennen. Anhand der Abbildung kann keine Angabe zur Qualität eines Koordinatenzugs gemacht werden, da die Qualität nicht als eigene Achse eingezeichnet ist. Dies wäre zwar ohne Weiteres möglich, bringt aber keinen Vorteil, da aufgrund der Vielzahl der dargestellten Punkte kein einzelner Koordinatenzug direkt nachvollziehbar ist. Dies ist auch zugleich die Schwäche der Parallelkoordinaten.

## 2.4.2 Scatterplots

Bei den *Scatterplots* [36], im Deutschen auch *Streukoordinaten* oder *Punktendiagramme* genannt, wird der entgegengesetzte Weg wie bei den Parallelkoordinaten beschritten. Der Versuch, alle Informationen in einem einzelnen Diagramm wiederzugeben, wird aufgege-

ben, stattdessen wird nach einem Schema eine Serie von Diagrammen erstellt, die alle einzeln betrachtet leichter zu verstehen sind. Zunächst soll das Beispiel der Ergebnisse des Gittertests für Wasser mit einer Güte von mindestens 10% wieder aufgegriffen werden. Abbildung 2.14 zeigt die gleichen Daten wie Abbildung 2.13 aufbereitet in einer *Scatterplot-Matrix*<sup>31</sup>.



**Abbildung 2.14:** Scatterplot-Matrix für das Ergebnis des Gittertests für Wasser mit einer Güte besser als 10%. Kein Parameter korreliert mit einem anderen.

Ein einzelner Scatterplot in der Scatterplot-Matrix entspricht einem kartesischen Koordinatensystem und zeigt den Zusammenhang zwischen je zwei Dimensionen der Daten. Durch die gezielte Darstellung von nur zwei Dimensionen eignet sich die Darstellung im Scatterplot besonders, um Korrelationen zwischen den einzelnen Dimensionen der Daten zu erkennen. Wenn zwei Dimensionen vollständig miteinander korreliert sind, so bildet sich die eingezeichnete Punktvolke entlang der Diagonalen vom Ursprung zum Maximum. In

<sup>31</sup>Die Matrix ist symmetrisch, weshalb nur die Hälfte überhalb der Hauptdiagonalen gezeigt wird.

dem gezeigten Beispiel ist keine Korrelation zwischen den einzelnen Dimensionen erkennbar.

Die Darstellung aller einzelnen Scatterplots als Matrix bewirkt die systematische Gegenüberstellung aller Dimensionen. Globale Informationen über alle Dimensionen, wie z.B. einzelne Optima und deren Attraktionsbasins, sind in der Scatterplot-Matrix jedoch nur schwer zu erkennen.



# Kapitel 3

## Problemstellung

In diesem Kapitel wird die Problemstellung der vorliegenden Diplomarbeit im Detail beleuchtet. Dabei werden Besonderheiten der Problemstellung herausgestellt sowie die Funktionsweise des verwendeten Simulators erläutert.

### 3.1 Anpassung der Stoffparameter

Die zentrale Frage zum Verständnis der Problemstellung ist, warum die Stoffparameter angepasst werden müssen. Die Antwort liegt in dem verwendeten Modell begründet. Zum Einen müssen die Parameter, die auf dem Modell beruhen, angepasst werden. So werden die Moleküle des Stoffs durch die Kugelnketten verschiedener Länge mit unterschiedlichen Radien der Kugeln repräsentiert. Zum Anderen ist das PC-SAFT Modell ein statistisches Modell, welches z.B. für die Position der freien Bindungsstellen entlang des Moleküls eine Verteilung verwendet. In Folge dessen müssen einige physikalische Eigenschaften nachjustiert werden. Welche Stoffeigenschaften dies sind wird später im Abschnitt 3.2.1 im Detail erläutert.

Bisher wird am Lehrstuhl für Thermodynamik mittels manueller experimenteller Vorgehensweise versucht, geeignete Stoffparameter zu finden. Die Basis für dieses Vorgehen bilden die individuellen Kenntnisse des Mitarbeiters zu dem betrachteten Stoff und dessen physikalischen Eigenschaften sowie die Kenntnisse über das PC-SAFT Modell. So kann etwa aus der physikalischen Größe des Moleküls die ungefähre Anzahl der benötigten Segmente sowie deren Durchmesser geschätzt werden. Ebenfalls sind die physikalischen Bindungsstärken bekannt, so dass auch hier bereits ungefähr abgeschätzt werden kann, in welchem Bereich sich die Bindungsstärken im PC-SAFT Modell bewegen müssen. Aus diesen Abschätzungen werden untere und obere Schranken gebildet. In diesem so beschränkten Bereich werden solange Experimente durchgeführt, bis ein guter Parametersatz gefunden wurde.

Über das Aussehen der Fitnesslandschaft, in der die Optimierung stattfindet, ist nichts

bekannt. Diese muss im Rahmen der experimentellen Analyse der Diplomarbeit zunächst untersucht werden. Zusätzlich existieren einige weitere Rahmenbedingungen.

### 3.1.1 Variable Dimension des Problems

Die Dimension des Parameterraums hängt stark von dem betrachteten System ab. Soll z.B. eine Anpassung an die Dampfdruckkurve eines Stoffes zur Ermittlung eines guten Parametersatzes für die Reinstoffparameter berechnet werden, so werden bis zu fünf Parameter des betrachteten Stoffs angepasst. Werden Mischungen verschiedener Stoffe betrachtet, so addieren sich für jede Komponente in der Mischung bis zu fünf weitere anzupassende Parameter hinzu. Der Suchraum und die Komplexität des Problems wachsen also mit der Komplexität des untersuchten Systems.

Aufgrund der variablen Dimension des Suchraums ist eine sinnvolle Begrenzung unumgänglich. Diese wird anhand der bereits erwähnten unteren und oberen Grenzen manuell vorgegeben. Dieses Expertenwissen ist aber lediglich eine grobe Abschätzung. Ein Optimum darf außerhalb des spezifizierten Intervalls liegen. Diese Tatsache muss bei der Anpassung der Parameter geeignet berücksichtigt werden.

Ein weiteres Problem bei der Optimierung ist die stark unterschiedliche Skalierung der verschiedenen Dimensionen des Suchraums. Da das bisher verwendete Quasi-Newton Verfahren mit einer festen Schrittweite für alle Dimensionen arbeitet, werden diese derzeit über einen einstellbaren Parameter vor jeder Iteration des Optimierers entsprechend skaliert.

### 3.1.2 Gültige und triviale Lösungen

Bei der Simulation können triviale Lösungen auftreten. Bei diesen wird die Simulation mit dem Hinweis „trivial solution“ beendet. Triviale Lösungen existieren immer dann, wenn in den unterschiedlichen Phasen die gleichen Dichten ermittelt werden. Wenn z.B. Wasserdampf und Wasser betrachtet werden, so leuchtet es auch direkt ein, dass diese beiden Phasen nicht die gleiche Dichte aufweisen können. Diese trivialen Lösungen verhindern ein Voranschreiten der Optimierung und müssen deshalb bei der Entwicklung mit einer speziellen Strategie berücksichtigt werden. Da die Lage trivialer Lösungen im Suchraum nicht im Voraus bekannt ist, können klassische Verfahren wie Barriere- oder Straffunktionen nicht im Vorfeld modelliert werden.

Jede Lösung, die nicht durch gleiche Dichten gekennzeichnet ist, wird als gültige Lösung betrachtet. Die Güte einer betrachteten Lösung ist der Gesamtfehler in Form der absoluten Abweichung der gefundenen Lösung von den betrachteten Messreihen in Prozent. Bei der Untersuchung eines Stoffes zur Berechnung der Dampfdruckkurve werden zwei Messreihen, je eine für die Flüssig- und für die Dampfphase, verwendet. Werden Mehrkomponentensysteme untersucht, so wird für jede Komponente eine eigene Messreihe bereitgestellt. Der Gesamtfehler addiert sich also aus einer Reihe von Abweichungen gegenüber den einzelnen

Messreihen.

Ab der fünften Nachkommastelle können Lösungen als gleichwertig betrachtet werden. Je besser die Güte des Ergebnisses ist, desto besser arbeitet der gefundene Parametersatz bei der Betrachtung von Mischungen.

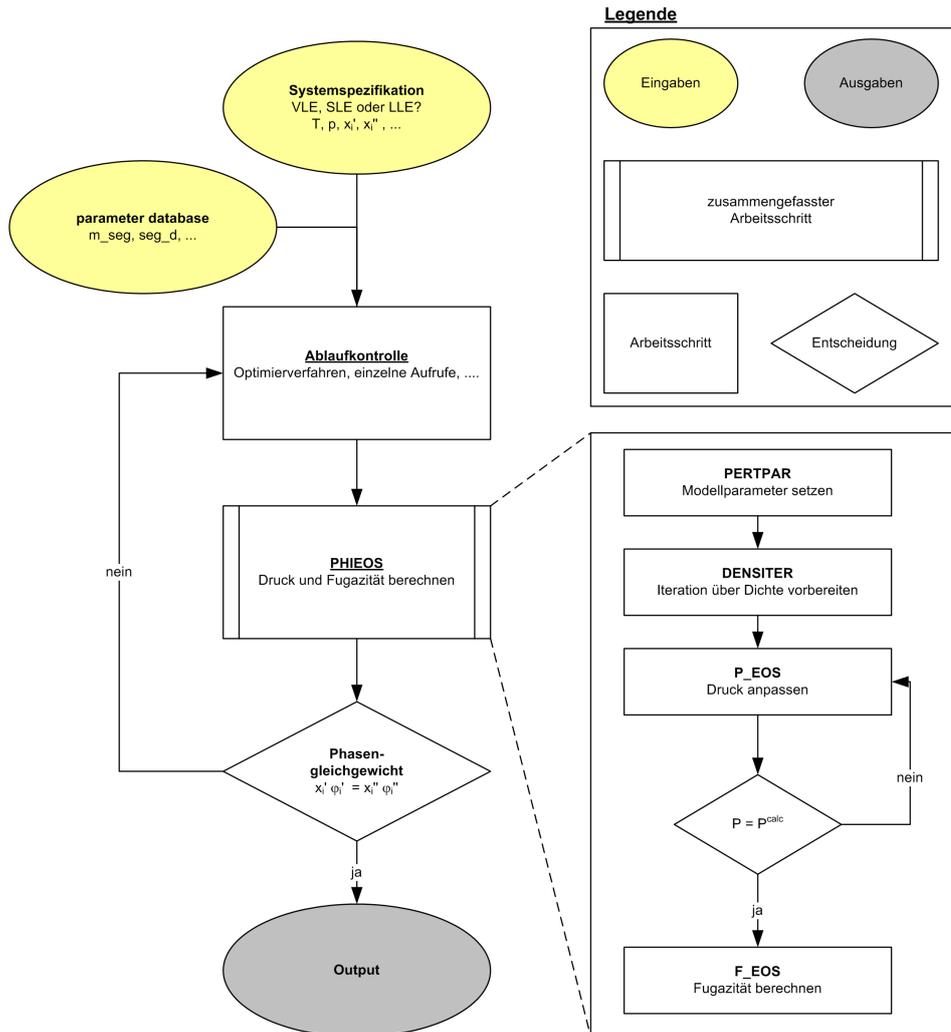
## 3.2 Simulation der Phasengleichgewichte

In diesem Kapitel wird zunächst der verwendete Simulator und dessen Arbeitsweise beschrieben. Anschließend werden die Ein- und Ausgabeschnittstellen erläutert und im Zusammenhang mit der Eingabe auf die Problematik bei den einzelnen Parametern eingegangen.

Wie bereits im Kapitel 2 „Grundlagen“ aufgezeigt wurde, kann anhand der Fugazitätskoeffizienten ermittelt werden, ob ein Gleichgewichtszustand vorliegt. Für die Berechnung der Fugazitätskoeffizienten auf Basis des PC-SAFT Modells wurde die Routine `PC-SAFT-Prop` am Lehrstuhl für Thermodynamik entwickelt. Sowohl die Routine `PC-SAFT-Prop` als auch der verwendete Simulator sind in der Programmiersprache *FORTRAN* geschrieben. Abbildung 3.1 stellt den Ablauf der Kernroutine `PHIEOS` (Subprozess) von `PC-SAFT-Prop` als Flussdiagramm dar.

Als Eingabe für die Berechnung der Fugazitätskoeffizienten werden die Temperatur  $T$ , der Druck  $P$ , die Stoffmengenanteile  $x_i^\alpha$  für die unterschiedlichen Phasen  $\alpha, \dots, \phi$  der Komponenten  $i = 1, \dots, n$  und deren Referenzpunkte  $f_i^0$  benötigt, welche in Abbildung 3.1 als Eingaben gekennzeichnet sind. Zusätzlich wird noch das betrachtete System spezifiziert, welches untersucht werden soll, z.B. *VLE* für *Vapor-Liquid-Equilibria*. Aus der *parameter database* werden dann die Reinstoffparameter und deren Interaktionsspezifikationen hinzugeladen. Die *parameter database* soll durch das automatisierte Verfahren der Parameteranpassung mit geeigneten Parametersätzen gefüllt werden.

In `PHIEOS` wird versucht, über die Veränderung der Dichten in den unterschiedlichen Phasen, einen Gleichgewichtszustand herbeizuführen. Dazu werden zunächst in der Routine `PERTPAR` die Parameter berechnet, die nicht von der Dichte abhängig sind, da diese in der weiteren Anpassung konstant bleiben. In der Routine `DENSITER` wird für jede Phase für jeden Messpunkt der betrachteten Messreihe anhand der übergebenen Parameter die Dichte angepasst um den Angaben des jeweiligen Messpunktes zu entsprechen. Dabei wird für die Messreihe der Fehler als absolute Abweichung zur Messreihe gebildet. Diese Iteration erfolgt solange, bis der berechnete Druck mit dem in der Messreihe angegebenen Druck übereinstimmt. Dann wird mit der nächsten Phase fortgefahren. Die tatsächliche Berechnung des Drucks während der Iteration wird gemäß des PC-SAFT Modells in der Routine `P_EOS` durchgeführt. Zum Abschluss wird die freie Helmholtz-Energie in der Routine `F_EOS` berechnet. Am Ende erfolgt die Rückgabe der ermittelten Dichten sowie der ermittelten Fugazitätskoeffizienten.



**Abbildung 3.1:** Das Ablaufdiagramm zeigt den Programmfluss der Simulation. Für die Berechnung der Phasengleichgewichte kann mittels der Flusskontrolle das Quasi-Newton Verfahren verwendet werden. Wird ein anderes Verfahren verwendet, so erfolgt nur eine Schleifenauswertung. PHIEOS ist die Kernroutine der am Lehrstuhl für Thermodynamik entwickelten Routine PC-SAFT-Prop zur Bestimmung der Dichten und der Fugazitätskoeffizienten.

Zur Ermittlung des Phasengleichgewichts mittels der Fugazitätskoeffizienten wird über die *Ablaufkontrolle* versucht, sich dem Zustand der *Isofugazität* mit den in PHIEOS berechneten Ergebnissen zu nähern. Dabei werden die Reinstoffparameter aus der *parameter database* immer wieder angepasst. Dies entspricht einem Optimierungsproblem.

Als Optimierungsverfahren wird in dem Simulator des Lehrstuhls für Thermodynamik ein Quasi-Newton Verfahren verwendet, welches mitunter bereits sehr gute Ergebnisse liefert. Problematisch sind jedoch die zuvor beschriebenen trivialen Lösungen, die bei der Berechnung der Phasengleichgewichte entstehen können. Wird das Quasi-Newton Verfahren im Attraktionsbasin einer trivialen Lösung gestartet, so terminiert dieses nach einer Anzahl von Iterationen ohne verwertbares Ergebnis, sobald die triviale Lösung erreicht wurde. Die

Dauer bis zur Terminierung kann im Vorfeld nicht abgeschätzt werden.

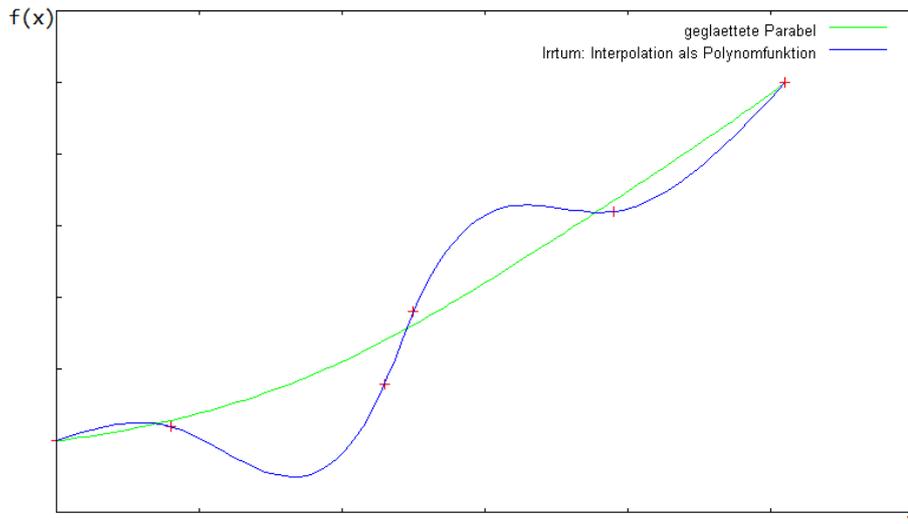
Die Wahrscheinlichkeit, dass die Optimierung mit einer trivialen Lösung terminiert, hängt stark von den in der *parameter database* als Startpunkt angegebenen Stoffparametern ab, wie bereits von Darius Lohmeier bemerkt wurde [31]. Deshalb wird zur Bestimmung des Startpunkts das Optimierungsverfahren in der schematischen Einbettung in der Ablaufkontrolle in Abbildung 3.1 durch verschiedene Verfahren ersetzt, die zunächst einen geeigneten Startpunkt bestimmen und von diesem ausgehend dann das Phasengleichgewicht berechnen sollen.

Als letzte Besonderheit seien an dieser Stelle noch die großen Schwankungen in der Laufzeit einer einzelnen Iteration des Simulators genannt. Das Ergebnis kann innerhalb einer Sekunde oder auch erst nach fast einer Minute ermittelt worden sein. Diese Problematik begründet sich durch die iterative Berechnung der Dichten in der P\_EOS Methode und der darin enthaltenen iterativen Berechnung der Verteilung der freien Bindungsstellen über das Kugelmodell der betrachteten Komponente. Auch wurden an dieser Stelle bei bestimmten Kombinationen von Parametern Endlosschleifen festgestellt. Bei der Wahl der Schranken für die Parameter muss darauf geachtet werden, dass solche Kombinationen nicht entstehen können.

### 3.2.1 Eingaben

Wie bereits im vorigen Abschnitt erläutert, benötigt die Anpassung der Stoffparameter die Angabe von Messreihen für die unterschiedlichen Phasen, an welche angepasst werden soll. Bei der Verwendung von Messreihen müssen Rauschen sowie eventuelle Messfehler berücksichtigt werden. Entsprechend ist die Herkunft der Messreihen von Bedeutung, da die Anpassung an eine stark verrauschte Messreihe schwieriger ist, da hierbei noch interpoliert werden müsste, um ein korrektes Resultat zu erhalten. Weiterhin besteht die Gefahr der Überanpassung, da eine kurze und stark verrauschte Messreihe zum Beispiel fälschlicherweise durch eine polynomielle Funktion anstelle einer Parabel approximiert werden kann (siehe Abbildung 3.2). Als Quelle für die in dieser Diplomarbeit analysierten Messreihen wird die Datensammlung [12] verwendet, da dort sämtliche Messreihen bereits statistisch durch mehrere Messungen geglättet sind. Die Länge der angegebenen Messreihe hat Einfluss auf die Laufzeit der Simulation, da eine Anpassung in der Methode P\_EOS für jeden Datenpunkt der Messreihe erfolgt.

Die zweite benötigte Eingabe sind die Parameter der *parameter database*. Diese wird in einem bestimmten Format als Textdatei dem Simulator übergeben. Das Format ist im Anhang B.2 detailliert beschrieben und mit einem Beispiel erläutert. Dabei wird zunächst der untersuchte Stoff benannt. Darauf folgen dessen für die Simulation relevanten Parameter. Für diese wird jeweils der Startwert, eine untere sowie eine obere Grenze und die



**Abbildung 3.2:** Beispiel für die Problematik bei der Anpassung an verrauschte Messreihen. Wird der absolute Fehler so gering, wie er bei einer nicht verrauschten Messreihe mit Parabelform wäre, hat eine Überanpassung stattgefunden und es wurde fälschlicherweise eine Kurve wie die in blau eingezeichnete Polynomfunktion gelernt.

Schrittweite für die Skalierung im Quasi-Newton Verfahren angegeben. Die Parameter, die angepasst werden sollen, sind:

- $m_{seg}$  (`m_seg`)  
Anzahl der Kugelsegmente im PC-SAFT Modell. Dieser Wert muss nicht ganzzahlig sein.
- $seg_d$  (`seg_d`)  
Durchmesser der Kugelsegmente. Dieser Parameter kann zusammen mit der Anzahl der Kugeln aus der Größe des betrachteten Moleküls grob geschätzt werden und beeinflusst maßgeblich die Bindungsstärke sowie die Verteilung der Bindungsstellen.
- $eps$   
Beschreibt die Möglichkeit der Wechselwirkung zwischen den Molekülen in Form von deren Anziehungskraft in Kelvin<sup>1</sup>.
- $eps_{hb}$  (`eps_hb2`)  
Stärke der Wechselwirkungen durch Wasserstoffbrückenbindungen.
- $k_{assoc}$  (`k_assoc`)  
Der Parameter  $k_{assoc}$  beschreibt den Radius, in dem die Wasserstoffbrücken wechselwirken können.

<sup>1</sup>William Thompson (1824-1907) [1], besser bekannt als *Baron Kelvin of the Largs*, war Professor für Naturphilosophie und theoretische Physik an der Universität Glasgow.

<sup>2</sup>hb = hydrogen bonding, Englisch für Wasserstoffbrücken

Die Anzahl der Wechselwirkungsmöglichkeiten ist durch das Molekül fest vorgegeben, nur dessen Verteilung über das Kugelmodell kann variieren. Die Verteilung kann über die Eingabeparameter nicht direkt beeinflusst werden, bestimmt aber wesentlich über die Laufzeit der Simulation mit.

An dieser Stelle soll nochmal ausdrücklich auf die Probleme mit dem Expertenwissen hingewiesen werden, das über die Parameter in die Simulation einfließt: Die Grenzen beruhen nur auf einer groben Abschätzung und die Schrittweitenanpassung ist entsprechend der erwarteten Größenordnung des jeweiligen Parameters eingestellt.

### 3.2.2 Ausgaben

Die Ausgabe des Simulators besteht entweder aus dem Hinweis, dass es sich um eine triviale Lösung handelt oder aus den Angaben der gefundenen Lösung. Im Fall einer gültigen Lösung wird der Stoff benannt und sämtliche Parameter aufgelistet, auch diejenigen, die nicht angepasst wurden. Die gefundenen Parameter sind der Parametersatz, der bei der Verwendung in anderen Systemen als Grundlage verwendet werden soll. Zusätzlich wird der absolute Fehler für jede Messreihe separat ausgewiesen und gibt somit Auskunft über die Güte des gefundenen Parametersatzes. Für ein Beispiel und das genaue Format der Ausgabedatei siehe Anhang B.3.



# Kapitel 4

## Experimentelle Analyse

Bereits bei der Erklärung der Problemstellung wurde beschrieben, dass über die Zielfunktion, auf der das Quasi-Newton Verfahren sowie weitere eingesetzte Verfahren arbeiten, außer der Existenz der nicht vorhersagbaren trivialen Lösungen nichts bekannt ist. Aus diesem Grund ist die experimentelle Analyse der Zielfunktion Bestandteil der vorliegenden Diplomarbeit. In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der experimentellen Analyse der Zielfunktion beschrieben, sowie einige gezielte Fragen zu der Zielfunktion gestellt und beantwortet.

### 4.1 Versuchsaufbau

Da der Simulator in *FORTRAN* geschrieben ist, wegen der Verfügbarkeit der im Rahmen der Diplomarbeit benötigten Softwarepakete und Algorithmen jedoch *Java* als Programmiersprache gewählt wurde, muss eine geeignete Lösung für die Einbettung des Simulators in die Java Umgebung gefunden werden. Zunächst wurde die Einbettung als Bibliothek in Java mittels eines *C++ Wrappers* [40, 31] getestet, was an der Anpassung des Simulators in *FORTRAN* gescheitert ist: Eine Übersetzung des Simulators mit einem anderen Tool, als der am Lehrstuhl für Thermodynamik eingesetzten kommerziellen Entwicklungsumgebung, ist aufgrund von Sprachstandards nicht gelungen.

Stattdessen wurde für die Einbettung des Simulators das Datei Interface verwendet. Entsprechend Abbildung 3.1 werden die Eingabespezifikationen in Konfigurationsdateien geschrieben, welche dann bei einem Aufruf des Simulators wieder eingelesen werden. Diese Vorgehensweise ist nicht so performant wie die in [40, 31] verwendete, weist dafür aber auch nicht den Nachteil auf, dass ein Neustart der Java-Software [31] nach jedem Experiment notwendig ist, da Bibliotheken in Java nicht wieder entladen werden können. Aufgrund der bereits in Kapitel 3.2 „Simulation der Phasengleichgewichte“ beschriebenen stark schwankenden Laufzeit kann der Geschwindigkeitsverlust, der durch die Verwendung des Datei Interface entsteht, vernachlässigt werden.

Es werden zwei Versionen des Simulators verwendet. Eine Version, in der das Quasi-Newton Verfahren aktiv ist und somit eine Optimierung jeder Eingabe stattfindet, sowie eine Version, die in der Ablaufkontrolle für nur eine einzelne Zielfunktionsauswertung sorgt und somit den Zielfunktionswert an exakt der eingegebenen Stelle zurückgibt. In Letzterer wird zusätzlich zu der absoluten Abweichung zur Messreihe in Prozent, welche weiterhin als Güte für den Vergleich von Ergebnissen verwendet wird, noch die quadratische Abweichung angegeben. Durch die Verwendung der quadratischen Abweichung in den evolutionären Algorithmen wird die Fitnesslandschaft mehr abgerundet und ist somit leichter zu lernen.

## 4.2 Teststoffe

Zur Analyse und zur späteren Evaluation der eingesetzten Optimierungsverfahren wird vom Lehrstuhl für Thermodynamik ein ausgewählter Satz an Teststoffen zusammen mit einem Parametersatz, der ein gutes Ergebnis liefert, zur Verfügung gestellt. Die Teststoffe sind *Wasser* ( $H_2O$ ), bei dem das Finden eines geeigneten Parametersatz ein einfaches Problem darstellt, *2-Propanol* ( $C_3H_8O$ ), welches als mittelschwer klassifiziert wurde, sowie *1-Propanol* ( $C_3H_8O$ ), welches als schwierig gilt. Die Analyse von Wasser und ein für dieses Problem entwickeltes Lösungsverfahren soll den Ausgangspunkt für die Übertragung auf weitere Stoffe bilden.

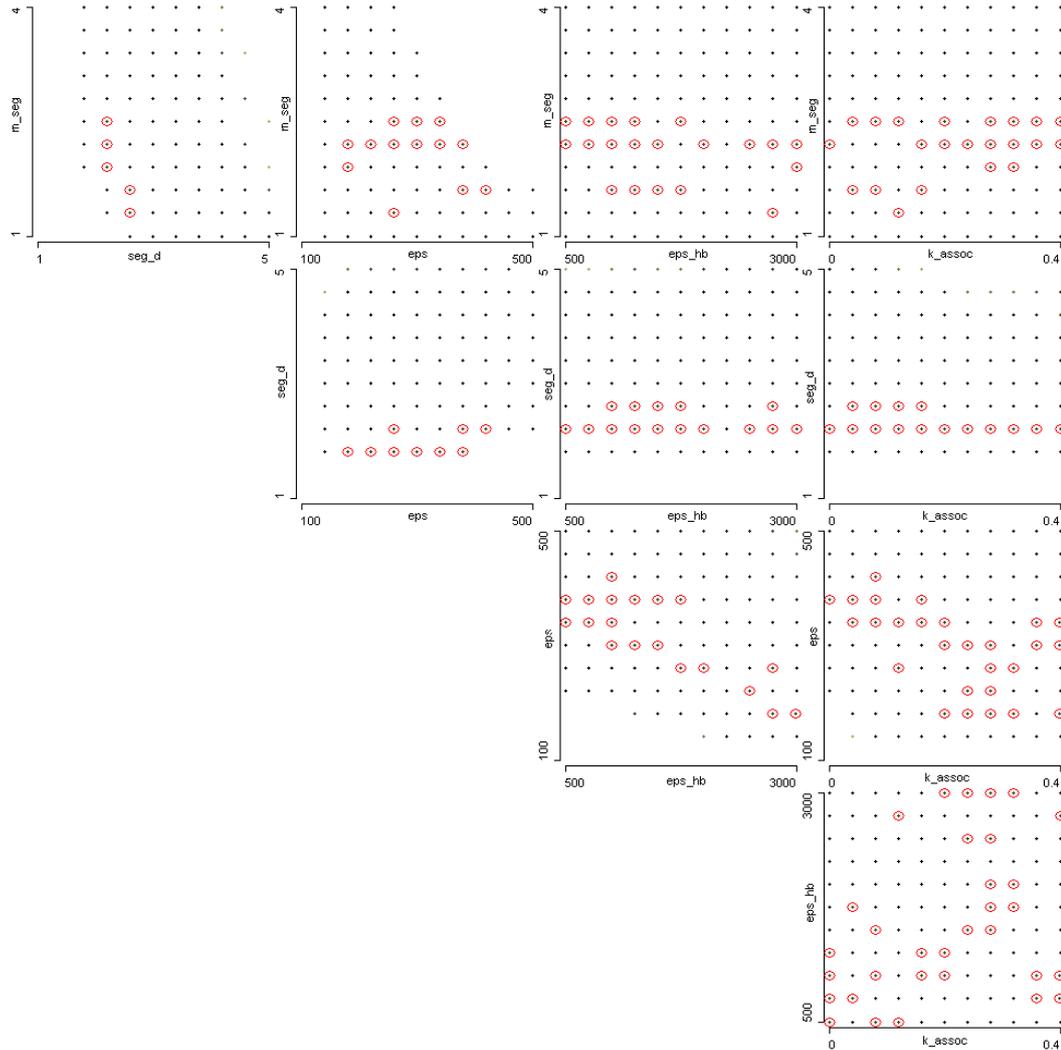
## 4.3 Gittertest

Um eine grobe Vorstellung vom Aussehen der Zielfunktion zu erhalten, wird zu Beginn der Analyse ein *Gittertest* durchgeführt. Dabei werden der Zielfunktion in einem gleichmäßigen Raster Stichproben entnommen und ausgewertet. Für den Gittertest wurde ein Rasterabstand von 10% in jeder Dimension des Suchraums inklusive der Randbereiche<sup>1</sup> der Funktion gewählt, was einen Stichprobenumfang von  $11^5$  Stichproben ergibt. Abbildung 4.1 zeigt das vollständige Ergebnis des Gittertests sowie die interessanten Bereiche der Zielfunktion. Diese ergeben sich durch die Filterung der Stichproben auf eine Qualität von mindestens 10%. Im Raster fehlende Punkte spiegeln einen Teil der trivialen Lösungen wieder: Jeder Punkt in einem der Scatterplots repräsentiert die Kombination der Parameter, welche an den Achsen angegeben sind, über alle Kombinationen der anderen Parameter und steht somit für eine Menge von Stichproben. Wenn nur ein Teil dieser Stichproben trivialen Lösungen entspricht, so ist dies im Scatterplot nicht ersichtlich.

Mit den bisherigen Ergebnissen ist bis auf die Einschränkung der Segmentanzahl sowie des Segmentdurchmessers auf einen interessanten Bereich für den Stoff Wasser noch keine weitere Information gewonnen, die bei der Bearbeitung des Problems hilft. Insbesondere

---

<sup>1</sup>Welche als obere und untere Schranken grob geschätzt sind, siehe Kapitel 3.1.1 „Variable Dimension des Problems“.



**Abbildung 4.1:** Scatterplot-Matrix für das Ergebnis des Gittertests für Wasser. Die rot markierten Punkte weisen eine Güte besser als 10% auf. Durch die Filterung nach der Qualität der Lösung werden vielversprechende Bereiche der einzelnen Parameter sichtbar.

lassen sich keine Zusammenhänge für das Auftreten der trivialen Bereiche ableiten. Aus diesem Grund wurden die in den folgenden Unterabschnitten ausgeführten speziellen Fragen formuliert und beantwortet.

#### 4.3.1 Gibt es Zusammenhänge zwischen den Parametern?

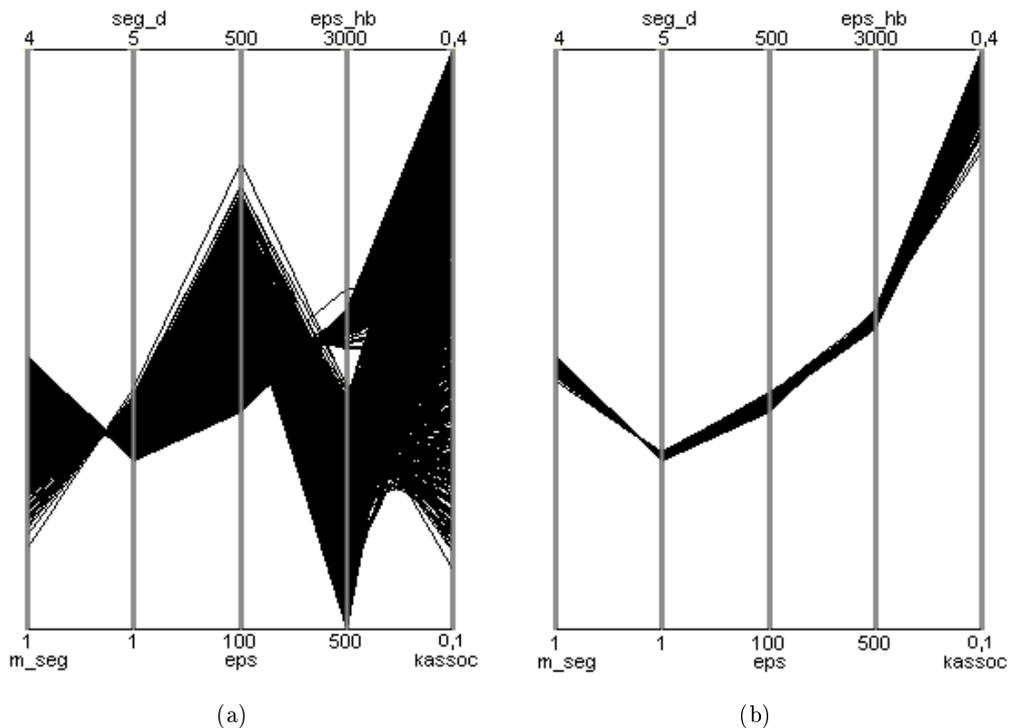
Um diese Frage zu beantworten, wurde der Gittertest mit aktiviertem Quasi-Newton Verfahren wiederholt, so dass jede Stichprobe als Startpunkt für einen Optimierungslauf dient. Das Ergebnis ist in Abbildung 2.14 im Kapitel 2.4.2 „Scatterplots“ dargestellt. Gute Lösungen existieren nur in bestimmten Wertebereichen der Parameter. Eine Korrelation ist jedoch für kein Parameterpaar ersichtlich.

### 4.3.2 Ist die Zielfunktion multimodal?

Diese Fragestellung kann ebenfalls mit dem Gittertest mit aktiviertem Quasi-Newton Verfahren beantwortet werden. Da der Gittertest flächendeckend über den gesamten zulässigen Bereich Optimierungsläufe startet, ist zu erwarten, dass die Stichproben in unterschiedlichen Attraktionsbasins liegen und somit verschiedene Optima aufdecken. Um die Ergebnisse zu visualisieren, wurden diese nach ihrer Güte gefiltert. Dabei wurde deutlich, dass die Zielfunktion stark multimodal ist.

Die Abbildung 2.13 im Kapitel 2.4.1 „Parallelkoordinaten“ zeigt die gefundenen Lösungen ab einer Güte von 10%. Zur Verdeutlichung wurde ein lokales Optimum mit einem hohen Wert des Parameters  $Eps$  farblich hervorgehoben. Weitere Optima sind z.B. bei niedrigem  $Eps$  Wert oder hohem  $Eps\_hb$  Wert zu erkennen.

Wird die Güte noch weiter gefiltert, so fallen immer mehr lokale Optima weg. Abbildung 4.2(a) zeigt alle Lösungen mit einer Güte besser als 1% Abweichung zu den Messreihen, die nur zwei der Optima erfüllen. Der Parameter  $Eps\_hb$  erlaubt die Unterscheidung der Optima durch den weißen Bereich zwischen den beiden Anhäufungen der schwarzen Linienzüge. In Abbildung 4.2(b) ist das globale Optimum mit einer Güte besser als 0,2% zu sehen.



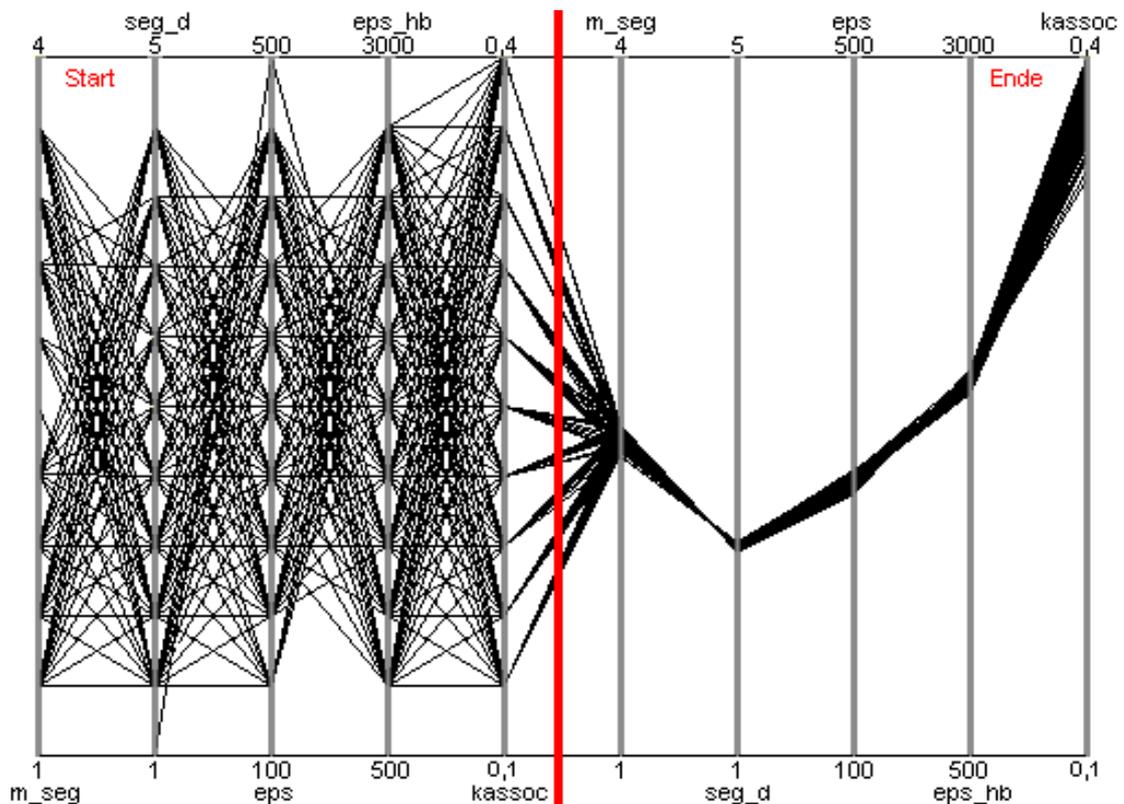
**Abbildung 4.2:** Ergebnisse des Gittertests mit aktiviertem Quasi-Newton Verfahren mit einer Güte besser als 1% in (a) sowie besser als 0,2% in (b).

Da die Zielfunktion multimodal ist, muss ein gefundenes Optimum noch nicht den Ansprü-

chen an die Abweichung zur Messreihe genügen. Dem muss entweder mit *Multistarts* oder mit einem Verfahren, welches lokale Optima wieder verlassen kann, begegnet werden.

### 4.3.3 Wie groß ist das Attraktionsbasin?

Da die Funktion multimodal ist, stellt sich die Frage nach der Größe des Attraktionsbasins des globalen Optimums. Dazu wurde die Abbildung 4.2 (rechts) um die Startpunkte des Quasi-Newton Verfahrens erweitert. Das Ergebnis dieser Erweiterung ist in Abbildung 4.3 zu sehen.



**Abbildung 4.3:** Ergebnisse des Gittertests mit einer Güte besser als 0,2%. Die linke Seite der Parallelkoordinaten kennzeichnet die Startpunkte des Quasi-Newton Verfahrens, während die rechte Seite die dazugehörigen Lösungen im globalen Optimum repräsentieren.

Erstaunlich an diesem Ergebnis ist, dass sich das Attraktionsbasin des globalen Optimums bei Wasser beinahe über den gesamten Suchraum erstreckt. Sämtliche lokalen Optima und trivialen Lösungen sind also nur beschränkte Teilräume im Suchraum und bilden keine durchgängige Barriere. Allerdings waren nicht mehr als 10,34% der Optimierungsläufe des Gittertests überhaupt erfolgreich, was auf viele triviale Bereiche hindeutet.

Abschließend soll Folgendes hervorgehoben werden: Wird das Optimierungsverfahren nicht von einer trivialen Lösung aufgehalten oder rutscht in einen Teilraum mit lokalem Optimum

ab, wird das globale Optimum bei Wasser von beinahe jedem Startpunkt im Suchraum gefunden.

#### 4.3.4 Können Ergebnisse auf andere Messreihen übertragen werden?

Ein Parametersatz wird während der Optimierung an die angegebenen Messreihen angepasst. Im Kapitel 3.2.1 „Eingaben“ wurde dargelegt, dass eine Überanpassung stattfinden kann, weshalb die Übertragbarkeit der gefundenen Lösungen auf andere Messreihen des gleichen Stoffs geprüft werden muss. Dazu wurde eine Messreihe für Wasser dem VDI Wärmeatlas [29] entnommen und für die beim Gittertest gefundenen guten Lösungen (Abweichung  $< 0,2\%$ , siehe Abbildung 4.2 rechts) des globalen Optimums die Abweichung zur VDI Messreihe berechnet.

	Original	VDI
Dichte	0.0702%	0.7153%
Dampfdruck	0.1783%	1.7377%

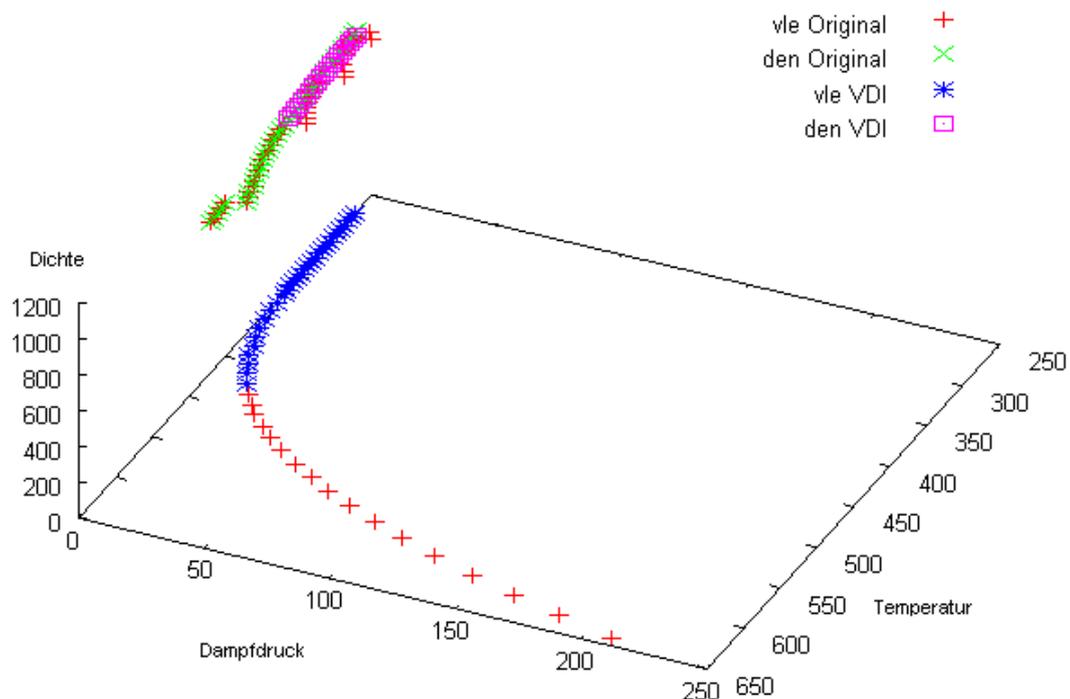
**Tabelle 4.1:** Gegenüberstellung der besten Ergebnisse aus den zuvor dargestellten Lösungen mit einer Güte besser als  $0,2\%$  für die Messreihe aus Dauert und der aus dem VDI Wärmeatlas.

Das Ergebnis in Tabelle 4.1 zeigt, dass die gefundenen guten Lösungen des Gittertests für die VDI Messreihe um eine Dekade schlechter sind, aber gültig. Zur Analyse, warum die Lösungen auf der neuen Messreihe schlechter sind, sind in Abbildung 4.4 die verwendeten Messreihen gegenübergestellt. Die Messreihe des VDI Wärmeatlas ist im Gegensatz zu den ansonsten verwendeten Messreihen aus [12] nicht geglättet, sodass ohne Überanpassung ein größerer Fehler entstehen muss. Auch wurden die Messreihen unter unterschiedlichen Bedingungen aufgenommen: Bei der Messreihe aus dem VDI Wärmeatlas wurde entweder der Dampfdruck oder die Dichte konstant gehalten.

Als Fazit kann herausgestellt werden: Die Ergebnisse können auf andere Messreihen übertragen werden und bleiben dabei gültig, auch wenn ihre Güte etwas geringer ausfällt.

#### 4.3.5 Sind Ergebnisse auf andere Stoffe übertragbar?

Um diese Frage zu beantworten, wurde für die guten Lösungen des Gittertests aus dem globalen Optimum für Wasser die Abweichung zur Messreihe von 1-Propanol berechnet. Wie zu erwarten war, sind die Ergebnisse (siehe Tabelle 4.2) nicht auf andere Stoffe übertragbar, da deren PT-Diagramme und somit auch die Kurven, an die angepasst wird, unterschiedlich sind. Auch weisen die Moleküle eine andere Form und Größe auf, sodass die Reinstoffparameter anders eingestellt werden müssen. Folglich müssen die Reinstoffparameter für jeden neuen Stoff ohne Vorwissen durch andere bereits bekannte Stoffe neu angepasst werden.



**Abbildung 4.4:** Vergleich der Messreihen jeweils für *vle* (Anpassung an die Dampfdruckkurve) und *den* (Anpassung an die Dichtekurve) aus der Datensammlung von Dauert und dem VDI Wärmeatlas.

	Wasser	1-Propanol
Dichte	0.0702%	23.3756%
Dampfdruck	0.1783%	>100%

**Tabelle 4.2:** Gegenüberstellung der besten Ergebnisse aus den zuvor dargestellten Lösungen für Wasser mit einer Güte besser als 0,2% und denen des gleichen Datenpunkts für 1-Propanol. Ein Fehler größer als 100% deutet auf die Nähe zu einer trivialen Lösung hin, da dann eine Messreihe noch angepasst werden kann, die zweite jedoch nicht mehr.

#### 4.3.6 Existieren Unterschiede bei den trivialen Lösungen?

Die trivialen Lösungen stellen eine Besonderheit des vorliegenden Optimierungsproblems dar. Wie bereits herausgestellt wurde, ist die Lage der trivialen Lösungen im Suchraum nicht im Vorfeld bestimmbar. Entsprechend wird betrachtet, wie die trivialen Lösungen entstehen und dabei versucht, Strategien für den praktischen Umgang mit den trivialen Lösungen zu entwickeln.

Wie bereits im Kapitel 3.1.2 „Gültige und triviale Lösungen“ erläutert wurde, entstehen triviale Lösungen durch gleiche Dichten in den unterschiedlichen Phasen während der Berechnung der Drücke und Fugazitätskoeffizienten. Alleine die Feststellung, dass es sich um eine triviale Lösung handelt, sagt noch nichts über die Qualität der trivialen Lösung aus.

Im Dialog stellte sich der Schwellwert, ab dem zwei Dichten als gleich betrachtet werden, als kleiner aber willkürlich gewählter Wert heraus. Daraus wurde die Aussage abgeleitet, dass der Unterschied in den Dichten als Unterscheidungsmerkmal für die Qualität der trivialen Lösungen verwendet werden kann. Weiterhin kann die Nummer der Iteration, in der die triviale Lösung aufgetreten ist, ebenfalls als Qualitätsmerkmal verwendet werden. Die Anzahl der Iterationen ist nur verfügbar, wenn ein Optimierungsverfahren eingesetzt wird. Dabei wird angenommen, dass Startpunkte, die schnell in trivialen Lösungen enden, weniger gut geeignet sind als solche, die erst spät zu trivialen Lösungen führen. Diese Qualitätsunterschiede in den trivialen Lösungen könnten verwendet werden, um in einem Reparaturversuch den trivialen Bereich wieder zu verlassen.

Eine Alternative zur Bewertung der Qualität der trivialen Lösungen ist die Idee, die Simulation auch bei der Unterschreitung des Schwellwerts zur Dichte-Differenz der Phasen nicht mit dem Hinweis auf eine triviale Lösung abubrechen, sondern stattdessen immer die Dichten zusätzlich zu den Messreihenfehlern auszugeben. Dabei wurde folgende Feststellung gemacht: Bei gleicher Dichte kann immer nur eine der Messreihen gut approximiert werden, für die andere Messreihe nimmt die Abweichung extreme Werte an. Auf diese Weise steht dem Optimierungsverfahren die gesamte Information zur Güte einer Lösung zur Verfügung und kann von diesem für den weiteren Fortschritt genutzt werden.

# Kapitel 5

## Ergebnisse

In diesem Kapitel werden zunächst die verschiedenen untersuchten Lösungsansätze beschrieben und diskutiert sowie ihre Ergebnisse präsentiert. Am Ende des Kapitels werden die Ergebnisse der verschiedenen Verfahren gegenübergestellt und bewertet.

### 5.1 Quasi-Newton Verfahren

Das Quasi-Newton Verfahren war bereits in dem Simulator zur lokalen Suche implementiert. Die Implementierung beruht auf einer kommerziellen Bibliothek und ist direkt in FORTRAN in die Ablaufkontrolle (siehe Abbildung 3.1) integriert. Dadurch entfallen für das Quasi-Newton Verfahren die zusätzlichen Zeiten, die durch die Verwendung der Konfigurationsdateien bei den anderen Verfahren entstehen. Damit das Quasi-Newton Verfahren wegen der stark unterschiedlichen Skalierung der Dimensionen auf diesem Problem eingesetzt werden kann, werden die Dimensionen mittels konfigurierbarer Parameter so skaliert, dass gleiche Schrittweiten verwendet werden können.

Die Qualität der gefundenen Ergebnisse entspricht den jeweiligen Optima, in deren Attraktionsbasin das Verfahren gestartet wurde. Wie bereits bei der experimentellen Analyse des Problems (siehe Abschnitt 4.3.3) beschrieben wurde, erstreckt sich das Attraktionsbasin bei Wasser über den gesamten Suchraum und wird nur durch einzelne Bereiche bestehend aus lokalen Optima oder trivialen Lösungen stellenweise unterbrochen. Bei 1-Propanol hingegen ist das Attraktionsbasin klein und von vielen trivialen Bereichen durchzogen. Die Experimente zeigen, dass bei zwei Punkten, die in vier der fünf Dimensionen übereinstimmen und in der verbleibenden Dimension weniger als 0,025% des Suchraums (die Spezifikation des Suchraums ist in Tabelle B.1 angegeben) auseinander liegen, dieser marginale Unterschied bereits ausreicht, um über den Erfolg des Quasi-Newton Verfahrens zu entscheiden. In Tabelle 5.1 sind vier mögliche Lösungen für 1-Propanol mit ihren Startpunkten und den nächsten Nachbarn der Startpunkte eingetragen. Es ist kein Parameter ersichtlich, der für den Misserfolg der Nachbarn gegenüber den Startpunkten maßgeblich

verantwortlich ist: Zu jedem Parameter ist mindestens ein Beispiel vorhanden, bei dem dieser Parameter konstant gehalten wurde. Diese Experimente zeigen somit auch, dass die Wahl des Startpunkts für das Quasi-Newton Verfahren schwierig ist. Entsprechend wurde mit einer zufälligen Verteilung von Startpunkten über den gesamten Suchraum kein Erfolg erzielt.

Fehler 1	Fehler 2	m_seg	seg_d	eps	eps_hb	k_assoc
Typ						
4.5857	1.2092	3.0805332	3.1369032	184.63724	2857.4245	0.03325589
Startpunkt		3.65730488	3.03438046	241.601856	1353.75432	0.01345609
nächster Nachbar		3.65730488	3.03512328	241.743139	1353.71365	0.01345609
Abstand (in %)		0	0.025	0.057	0.001	0
0.7582	0.3531	3.2113405	3.1419273	209.99414	2327.5476	0.03592788
Startpunkt		3.29136797	3.19112069	207.033664	2315.29810	0.03186241
nächster Nachbar		3.29136797	3.19039270	207.033664	2315.29810	0.03186241
Abstand (in %)		0	0.024	0	0	0
3.9042	1.7694	1.8758076	3.8226303	252.08260	3053.7876	0.00576530
Startpunkt		1.85965827	3.26118413	249.761017	3292.53676	0.00482951
nächster Nachbar		1.85965827	3.23172953	248.931079	3294.72742	0.00482951
Abstand (in %)		0	0.981	0.332	0.073	0
0.4866	0.9246	2.7480840	3.3335404	228.03145	2476.2192	0.01850556
Startpunkt		2.01938522	3.31622122	294.378230	2094.99211	0.04062023
nächster Nachbar		2.24993866	3.31622122	282.992962	1991.45564	0.03148522
Abstand (in %)		7.685	0	4.554	3.451	9.144

**Tabelle 5.1:** Auszug aus den gültigen Lösungen für 1-Propanol. Die Startpunkte dieser Lösungen wurden mit dem SMS-EMOA ermittelt. Die Tabelle ist pro gefundener Lösung in einen Block mit vier Zeilen eingeteilt: In der ersten Zeile wird die Position des Optimums angegeben und dessen Güte für jede Messreihe getrennt ausgewiesen: Fehler 1 entspricht der absoluten Abweichung der berechneten Kurve zur ersten übergebenen Messreihe in Prozent, Fehler 2 analog. Die zweite Zeile zeigt den zugehörigen Startpunkt. In der dritten Zeile wird das Individuum, welches in der Population des SMS-EMOA der nächste Nachbar des Startpunkts ist, dargestellt. In der vierten Zeile wird für jede Dimension der Abstand zwischen dem Startpunkt und dem nächsten Individuum in Prozent des Suchraums angegeben.

Der Hauptgrund für das Scheitern des Quasi-Newton Verfahrens sind die trivialen Lösungen, deren Position im Raum nicht vorhersagbar ist. Wird in einem Iterationsschritt ein Punkt im Suchraum erreicht, für den eine triviale Lösung von der Methode PHIEOS ermittelt wird, dann bricht das Quasi-Newton Verfahren ab. Ein Reparaturversuch der Lösung findet nicht statt.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass das Quasi-Newton Verfahren sehr gute Lösungen findet, sofern es nicht durch triviale Lösungen frühzeitig terminiert. Diesem Nachteil steht die hohe Geschwindigkeit durch die interne Implementierung in FORTRAN gegenüber. Die Schwierigkeit liegt in der Wahl des Startpunkts.

## 5.2 CMA-ES

Die CMA-ES nach Hansen [25] kann durch die Anpassung der Schrittweite in der Evolutionsstrategie sehr gut auf Problemen mit unterschiedlicher Skalierung der Dimensionen arbeiten. Weiterhin konvergiert die CMA-ES bereits nach, für einen evolutionären Algorithmus, wenigen Funktionsauswertungen und wurde bereits erfolgreich in der Problemdomäne der Thermodynamik zur Bestimmung von Gleichgewichten eingesetzt [31, 40]. Aus diesen Gründen wurde die CMA-ES auf die Problemstellung dieser Diplomarbeit angewandt.

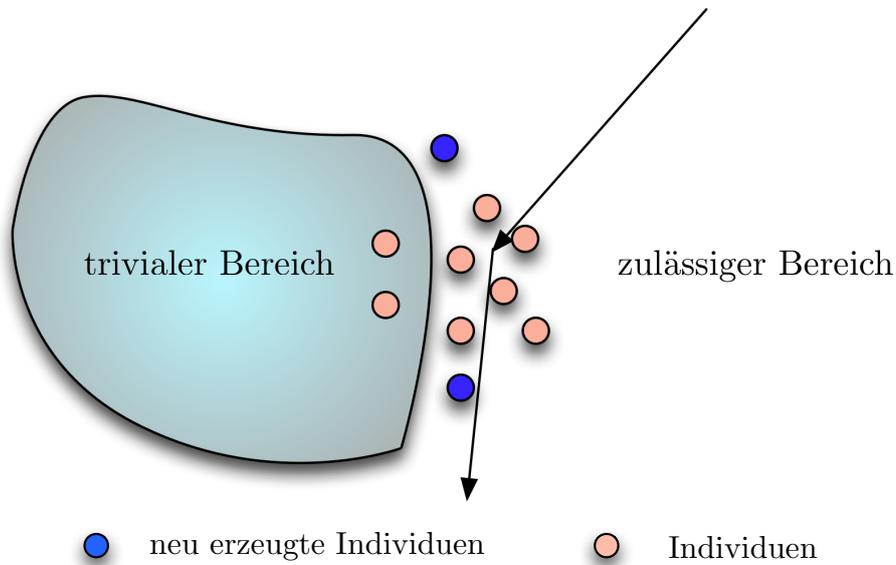
In jeder Iteration wird von der CMA-ES eine Population in Form von Stichproben aus der Umgebung erzeugt, deren Form und Ausdehnung durch die Kovarianzmatrix beschrieben wird (siehe Kapitel 2.2.4.2 „Covariance Matrix Adaptation - Evolution Strategy“). Über die Individuen der Population wird die Richtung und die Schrittweite für den Iterationsschritt berechnet. Entsprechend kann über die Individuen Einfluss auf die Richtung genommen werden, womit die trivialen Bereiche vermieden werden können.

Dabei sind zwei unterschiedliche Lösungsstrategien für den Umgang mit den trivialen Lösungen entwickelt worden, welche nachfolgend beschrieben werden.

### 5.2.1 Resampling

Beim Resampling wird von der Eigenschaft der CMA-ES Gebrauch gemacht, dass der Abstieg niemals in eine Richtung stattfindet, über die in der Population nichts bekannt ist. Um eine Unwissenheit der Population hinsichtlich der trivialen Lösungen zu erzeugen, wird jedes Individuum, welches in einem trivialen Bereich erzeugt wird, verworfen und neu erzeugt. In Abbildung 5.1 ist dargestellt, wie die CMA-ES am Rand des trivialen Bereichs entlang läuft.

Die Wahl eines guten Startpunkts ist bei der CMA-ES mit Resampling ähnlich dem Quasi-Newton Verfahren schwierig. Der Startpunkt der CMA-ES muss in einem nicht-trivialen Bereich des Suchraums liegen, damit beim Resampling auch nicht-triviale Lösungen gefunden werden können. Dazu wurde die Anzahl der Versuche, in denen ein einzelnes Individuum verworfen werden kann, auf zehn begrenzt. Wird in der Umgebung des Startpunkts kein gültiges Individuum gefunden, so wird ein neuer Startpunkt zufällig gewählt. Ansonsten wird der Startpunkt auf ein gültiges Individuum gesetzt und anschließend die CMA-ES neu gestartet. Zusätzlich zu diesen Maßnahmen musste die initiale Schrittweite auf eine sehr kleine Umgebung gesetzt werden, da bei grösseren Umgebungen die Wahrscheinlichkeit, bei einer zufälligen Stichprobe über den gesamten Suchraum ein ungültiges Individuum zu



**Abbildung 5.1:** Die Abbildung zeigt das Verhalten der CMA-ES in der Nähe von trivialen Bereichen: Die CMA-ES gelangt während der Iterationen in die Nähe eines trivialen Bereichs. Bei der Erstellung der Population werden zwei Individuen im trivialen Bereich erzeugt. Diese werden verworfen und zwei neue gültige Individuen (blau) erzeugt. Anhand der Population wird der weitere Abstieg ermittelt.

erzeugen, in etwa 89,66%<sup>1</sup> beträgt.

Als weitere Varianten der Reparatur von ungültigen Lösungen anstelle des Resampling wurde z.B. die exakte Ermittlung des Randes des trivialen Bereichs mittels geometrischer Suche in Betracht gezogen, um das Individuum dort zu platzieren oder den Hyperellipsoiden durch Hyperebenen einzuschränken. Diese Ideen wurden wieder verworfen, da Lösungen am Rand des ungültigen Bereichs durch das Kriterium der gleichen Dichten eigentlich ungewollte Lösungen sind. Der nachfolgende Ansatz mit Straffunktionen versucht diese Lösungen zu verhindern.

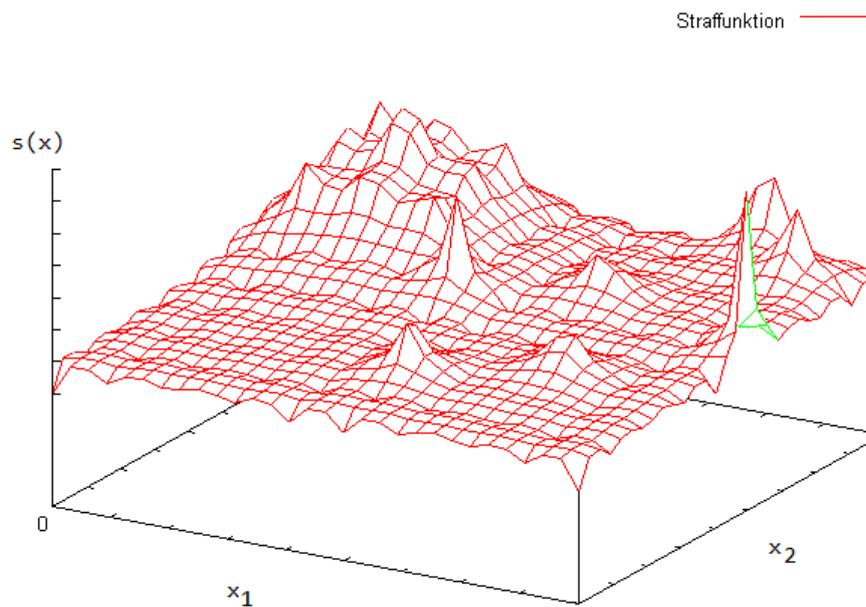
### 5.2.2 Straffunktion

Bei dieser Variante der CMA-ES werden Individuen, die in trivialen Bereichen gebildet wurden, derart repariert, dass die CMA-ES von den trivialen Bereichen abgestoßen wird. Dazu wird eine Straffunktion während des Laufs der CMA-ES, quasi *online*, konstruiert, die als Strafterme Funktionen in Form eines Hyperkegels auf eine triviale Lösung aufsetzt. Der Radius der Grundfläche sowie die Höhe des Kegels entsprechen der Entfernung des Individuums vom Schwerpunkt der Population. Als Alternative für die Höhe des Kegels wurde eine Verrechnung des Fehlerwertes mit der Dichte-Differenz getestet, welche für eine

<sup>1</sup>Diese Angabe beruht auf der Erfolgsquote des Gittertests als repräsentativer Querschnitt des Suchraums.

mögliche Unterscheidung der Qualität der trivialen Lösungen eingefügt wurde (siehe Kapitel 4.3.6). Aufgrund der geringen Unterschiede in der Dichte-Differenz und der oftmals ausgewiesenen Differenz von Null wurde dieser Ansatz wieder verworfen.

Durch die räumliche Ausdehnung der einzelnen Strafterme werden Individuen in der Nähe von trivialen Lösungen durch den Strafterm beeinflusst. Die Beiträge der einzelnen Kegel können sich auch überlappen, wobei deren Strafterme addiert werden. Anschaulich können Strafterme sich durch mehrere Kegel in einem Bereich auftürmen, was in Abbildung 5.2 beobachtet werden kann.



**Abbildung 5.2:** Schematisches Beispiel einer Straffunktion, wie sie während des Laufs der CMA-ES aufgebaut wird. Wird die Zielfunktion ausgewertet, so wird immer der Strafterm aus der Straffunktion addiert.

Werden mehrere Läufe der CMA-ES an verschiedenen Startpunkten durchgeführt, um der Multimodalität der Zielfunktion zu begegnen, können alle Läufe eine gemeinsame Straffunktion konstruieren. Dadurch kann Wissen über die Zielfunktion aus den verschiedenen Läufen miteinander geteilt werden. Allerdings kann dadurch auch ein späterer Lauf durch die Ergänzung von Straftermen die Fitness von Individuen früherer Läufe beeinflussen. Um diesem entgegenzuwirken, müssten alle Läufe, inklusive aller Individuen der einzelnen Generationen und des Evolutionspfads, gespeichert werden, damit die Beeinflussung eines Laufs festgestellt und dieser gegebenenfalls an der ungültig gewordenen Iteration fortgesetzt werden kann.

Durch die räumliche Ausdehnung der Strafterme wird nicht nur Steigung in den trivialen Bereichen erzeugt, die es erlaubt, in diesen Bereichen zu navigieren, sondern es werden auch Optima, die sich direkt an den Rändern der trivialen Bereiche befinden, überdeckt,

was die CMA-ES auf die wirklich interessanten Optima lenken soll. Durch die Überdeckung der unerwünschten Optima funktioniert die online konstruierte Straffunktion wie eine *filled function* [20]. Wie Ge in seinem Artikel bereits herausgestellt hat, ist die genaue Einstellung der Parameter der von ihm vorgeschlagenen *filled function* notwendig, um akzeptable Ergebnisse zu erzielen. Eine Analyse mit dem gleichen Ergebnis liefert die Diplomarbeit von Dickhöfer [15] auch für alternative Verfahren mit der Zielsetzung, Optima aus der Zielfunktion zu überdecken. Thomas Dickhöfer kommt in seiner Diplomarbeit zu dem Schluss, dass die Verwendung einer Funktion zur Überdeckung der Optima einer Zielfunktion genaue Kenntnis über deren Aussehen erfordert.

Diese Voraussetzung ist für die in dieser Diplomarbeit untersuchte, sich mit den Stoffen ändernde, Zielfunktion nicht gegeben. Aus diesem Grund wurden nur Experimente mit den einfachen Kegeln durchgeführt und die weitere Optimierung und Feinanpassung der Straffunktion wurde nicht untersucht. Das Konzept zur Behandlung von sich gegenseitig beeinflussenden Läufen der CMA-ES bei der Konstruktion einer gemeinsamen Straffunktion wurde aus diesem Grund nicht implementiert.

### 5.2.3 Evaluation der CMA-ES

Abschließend werden in diesem Abschnitt die Ergebnisse der beiden verschiedenen Ansätze zum Umgang mit den trivialen Bereichen der CMA-ES angegeben und verglichen.

Da die CMA-ES ein einkriterielles Verfahren ist, mußten zunächst die Fehler der Messreihen geeignet aggregiert werden. Da keine der beiden Messreihen  $M_1$  und  $M_2$  bevorzugt ist und beide Messreihenfehler gleichermaßen minimiert werden sollen, wurde der Gesamtfehler  $G$  nach folgender Formel gebildet:

$$G = \text{Fehler } M_1 + \text{Fehler } M_2 + (\text{Fehler } M_1 - \text{Fehler } M_2)^2. \quad (5.1)$$

Der Gesamtfehler setzt sich aus den Einzelfehlern der Messreihen sowie aus deren quadriertem Differenz zusammen. Dadurch wird den Lösungen der Vorzug gegeben, bei denen die Approximation beider Messreihen in etwa die gleiche Güte aufweisen.

Um die Lösungen der CMA-ES zu vergleichen, wurde einmalig ein Test-Set von 100 gleichverteilten Stichproben aus dem Suchraum für den Stoff Wasser erstellt. Dieses Test-Set bildet die Startpunkte der CMA-ES ohne Modifikationen, mit Resampling, mit Straffunktionen und für das Quasi-Newton Verfahren. Für die Ermittlung der Ergebnisse der CMA-ES ohne Modifikationen wurde die Version des Simulators verwendet, die immer die Fehler und die Dichten der einzelnen Messreihen ausgibt und nicht nur den Hinweis auf eine triviale Lösung. Tabelle 5.2 zeigt einige Kennzahlen der Ergebnisse.

In dem Test-Set sind 15 geeignete Startpunkte für Wasser enthalten. Das Quasi-Newton Verfahren hat von allen 15 Startpunkten aus gute Ergebnisse gefunden, wie dem Durchschnittswert entnommen werden kann. Das beste Ergebnis des Quasi-Newton Verfahrens entspricht dem aus dem Gittertest bekannten globalen Optimum. Die besten Ergebnisse

	CMA-ES	Resampling	Straffunktion	Newton
Beste Lösung	0,4354	0,4695	0,5679	0,1904
Durchschnitt	55,166	12,364	57,67	0,2037
Anzahl Erfolge	52	24	36	15
Anzahl < 1%	5	5	5	15

**Tabelle 5.2:** Die vier betrachteten lokalen Suchverfahren in der Gegenüberstellung auf einem Test-Set von 100 gleichverteilt gewählten Startpunkten für Wasser. Zu jeder Variante wird die beste gefundene Lösung, die durchschnittliche Güte der Lösungen, die Anzahl der erfolgreichen Läufe sowie die Anzahl der Läufe mit einer Mindestgüte von 1% angegeben. Die dargestellten Werte entsprechen der einfachen Summe der Fehler der Messreihen.

der nicht modifizierten CMA-ES und der Variante mit Resampling entsprechen ungefähr einander, sind aber von deutlich geringerer Qualität als das Ergebnis des Quasi-Newton Verfahrens. Das Ergebnis der Straffunktion ist schlechter, da das Optimum durch die Strafterme beeinflusst wird. Die CMA-ES und die untersuchten Varianten haben von den 15 geeigneten Startpunkten jeweils nur fünf Startpunkte zu einem akzeptablen Ergebnis bringen können. Diese Beobachtung kann auf noch nicht exakt genug angepasste Schrittweiten sowie den nicht-Determinismus der CMA-ES zurückgeführt werden. Im Gegenzug erzielen die CMA-ES und ihre Varianten häufiger ein Ergebnis als das Quasi-Newton Verfahren, die Ergebnisse sind jedoch von schlechter Qualität und nicht weiter verwertbar. Bemerkenswert ist, dass die CMA-ES ohne Modifikationen trotz der großen Abweichungen bei den Messreihen in den trivialen Bereichen häufiger eine gültige Lösung findet als die beiden Varianten. Beim Resampling terminieren Läufe häufig frühzeitig, wenn in ihrer Umgebung der triviale Bereich dominiert und mit der vorgegebenen Anzahl an Versuchen keine gültigen Individuen erzeugt werden können. Die Variante der Straffunktionen liegt von der Anzahl der Erfolge zwischen der nicht modifizierten CMA-ES und der Variante des Resampling. Da die trivialen Lösungen repariert werden, ist die Erfolgsquote höher als bei der Resampling Variante. Allerdings können durch die Reparatur künstliche Optima im trivialen Bereich entstehen, die ein Verlassen des trivialen Bereichs verhindern. Dadurch ist die Erfolgsquote niedriger als bei der nicht modifizierten Variante.

Als Fazit für die lokalen Suchverfahren ist festzustellen, dass das Quasi-Newton Verfahren der CMA-ES vorzuziehen ist. Die Ergebnisse der CMA-ES sind insbesondere in den Fällen, in denen das Quasi-Newton Verfahren versagt, so schlecht, dass sie ebenfalls verworfen werden können. Die Wahl eines geeigneten Startpunkts ist bei allen untersuchten lokalen Suchverfahren schwierig.

### 5.3 SMS-EMOA

Da die einkriteriellen Ansätze das Problem der schwierigen Wahl des Startpunkts aufweisen, sollen die Startpunkte mittels mehrkriterieller Optimierung mit dem SMS-EMOA gewählt werden. Dazu müssen Kriterien gefunden werden, die typisch für Optima der Zielfunktion sind. Die offensichtliche Möglichkeit ist die Optimierung der Messreihenfehler als separate Ziele. Die zweite Variante verwendet den Gesamtfehler sowie die Dichte-Differenz unter der Annahme, dass eine zu geringe Dichte-Differenz zu trivialen Lösungen führt und diese einen Randpunkt des Pareto-Sets bilden sowie der andere Randpunkt eine maximale Dichte-Differenz aufweisen wird. Es ist zu erwarten, dass ein guter Startpunkt im Bereich des Knies bis hin zum Randpunkt maximaler Dichte zu finden ist.

Die Wahl des mehrkriteriellen Optimierers ist aus zweierlei Gründen auf den SMS-EMOA gefallen: Zum Einen, da dieser bereits erfolgreich in der Problemdomäne der Thermodynamik eingesetzt worden ist [32]. Zum Anderen wächst die Anzahl der Messreihen mit der Komplexität des betrachteten Systems und der SMS-EMOA konvergiert, im Gegensatz zu anderen EMOAs, auch in hohen Dimensionen gegen die Pareto-Front.

Nachfolgend sollen die Varianten beschrieben werden.

#### 5.3.1 Gesamtfehler - Dichte

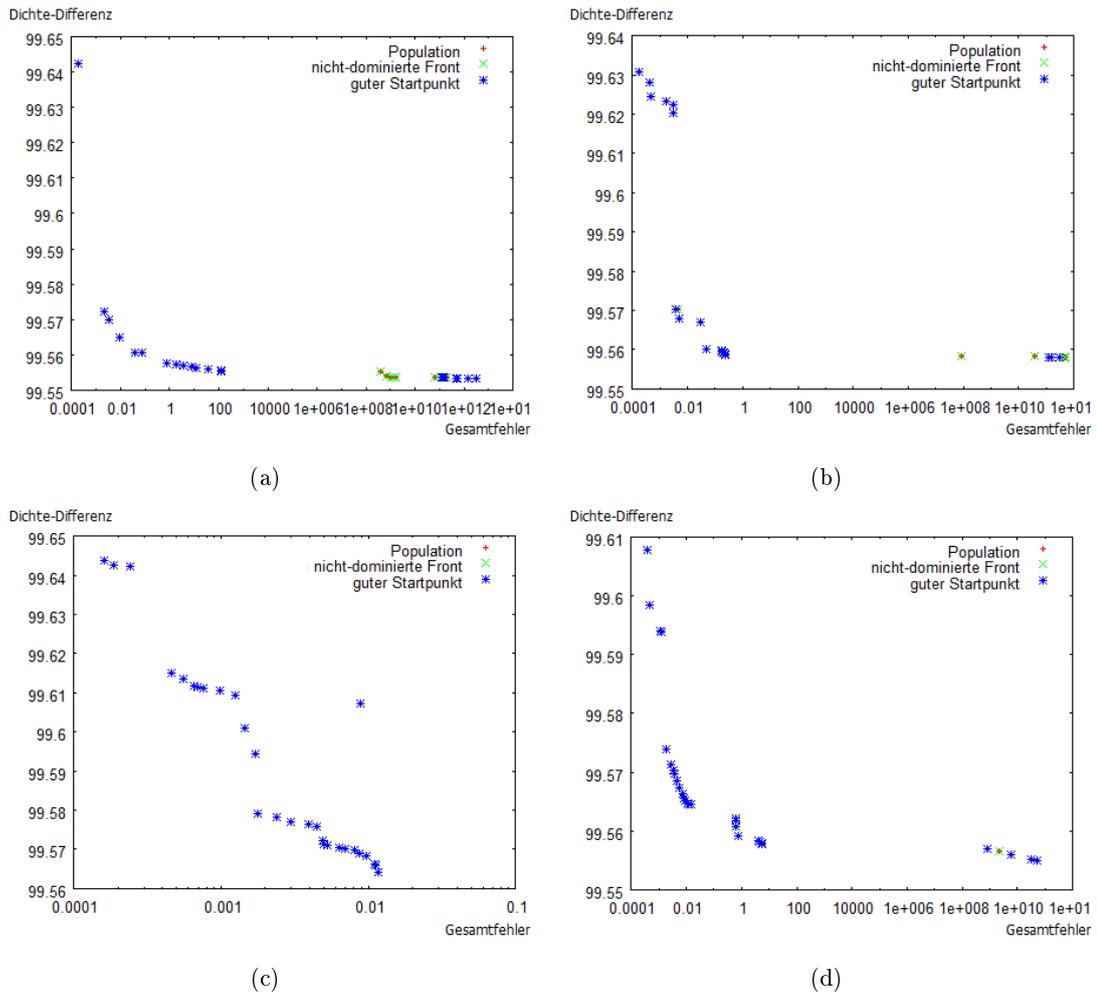
Der Gesamtfehler wird aus den beteiligten Messreihen nach der Formel 5.1 gebildet, damit beide Messreihen gleichermaßen optimiert werden. Die Dichte wird für jede Messreihe getrennt ausgegeben und deren Differenz bildet das zweite Optimierungsziel. Da der SMS-EMOA in der vorliegenden Implementierung nur Minimierung beherrscht, wird die Dichte-Differenz als

$$\Delta_{Dichte} = 100 - Dichte\ 1 - Dichte\ 2 \quad (5.2)$$

gebildet. Dadurch wird die Nebenbedingung des Simulators direkt in die Zielfunktion integriert.

Zunächst wird dieses Verfahren auf den Stoff Wasser angewendet. Entsprechend der Ergebnisse der Gegenüberstellung der lokalen Suchverfahren wird die Population des SMS-EMOA als Startpunkt für das interne Quasi-Newton Verfahren verwendet. Abbildung 5.3 zeigt die Population, die nicht-dominierte Front sowie die gelungenen Startpunkte für einen Auszug von vier SMS-EMOA Läufen mit 30 Individuen bei 1000 Iterationen. Dabei ist zu erkennen, dass beinahe jedes Individuum als geeigneter Startpunkt fungiert. Dies lässt sich auf das große Attraktionsbasin von Wasser zurückführen und auf die Tatsache, dass durch die Maximierung der Dichte-Differenz die Startpunkte möglichst weit von den trivialen Bereichen entfernt gewählt werden.

In Tabelle 5.3 werden die besten und schlechtesten Werte der erfolgreichen Läufe, deren Startpunkte in Abbildung 5.3 zu sehen sind, den bekannten guten Werten, getrennt nach



**Abbildung 5.3:** Die Grafiken zeigen vier Beispiele von SMS-EMOA Populationen. Auffallend ist, dass für den Stoff Wasser die Suche eines geeigneten Startpunktes gut gelöst ist: Beinahe jeder Punkt der Population fungiert als Startpunkt.

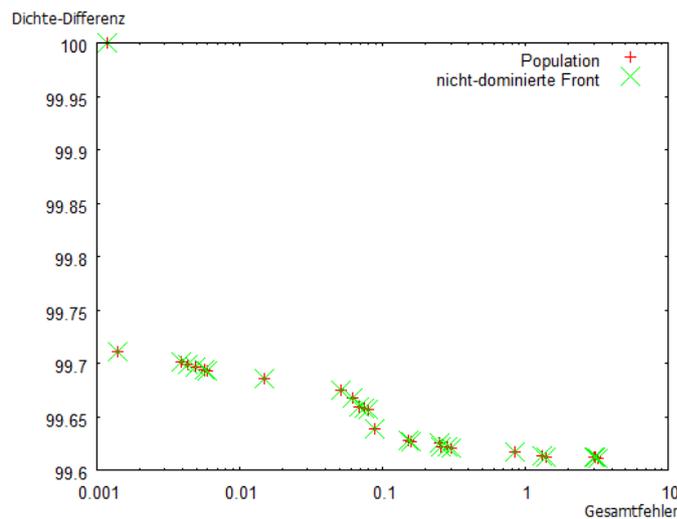
den einzelnen Messreihen, gegenübergestellt. Während der lokalen Suche, mit den Individuen der SMS-EMOA Population als Startpunkte, wird für jede Population mindestens einmal das gleiche Ergebnis wie das Bekannte gefunden. Weiterhin gibt es in jeder Population mindestens ein Individuum, für welches das Quasi-Newton Verfahren ein Ergebnis liefert, welches in beiden Messreihen eine geringere Abweichung oder zumindest eine geringere Summe der Abweichungen aufweist. Da keine der Messreihen bevorzugt wird, ist eine geringere Summe gleichbedeutend mit einer besseren Lösung. In weiteren Experimenten mit dem SMS-EMOA werden Ergebnisse gleicher Güte erzielt.

Da der Stoff Wasser zu Beginn als einfacher Stoff klassifiziert wurde, muss geprüft werden, ob die Ergebnisse für die anderen beiden Stoffe von ähnlicher Qualität sind. Dazu wurde zunächst für 1-Propanol ein Test mit identischer Parametereinstellung (Population 30, 1000

	Lauf (a)	Lauf (b)	Lauf (c)	Lauf (d)	bekannt
$M_1$ Bester Wert	0,0631	0,066	0,0634	0,0653	0,0702
$M_1$ Schlechtester Wert	1,546	1,5469	0,6192	0,3488	-
$M_2$ Bester Wert	0,1204	0,1223	0,122	0,1226	0,1783
$M_2$ Schlechtester Wert	1,1865	1,0943	1,1864	1,1864	-
Anzahl Erfolge (von 30)	21	25	30	29	-

**Tabelle 5.3:** Die Tabelle stellt die besten und schlechtesten Ergebnisse der vier in Abbildung 5.3 dargestellten Populationen des SMS-EMOA nach den einzelnen Messreihen aufgeteilt gegenüber. Jeder Lauf findet für jede Messreihe mindestens einen Wert, der besser ist, als die bekannte gute Lösung. Die Anzahl der Erfolge gibt an, wie viele der Individuen als Startpunkte geeignet sind.

Iterationen) durchgeführt. Abbildung 5.4<sup>2</sup> zeigt die Population und die nicht-dominierte Front dieses Versuchs. Gute Startpunkte wurden nicht gefunden, alle 30 Individuen enden in trivialen Lösungen.

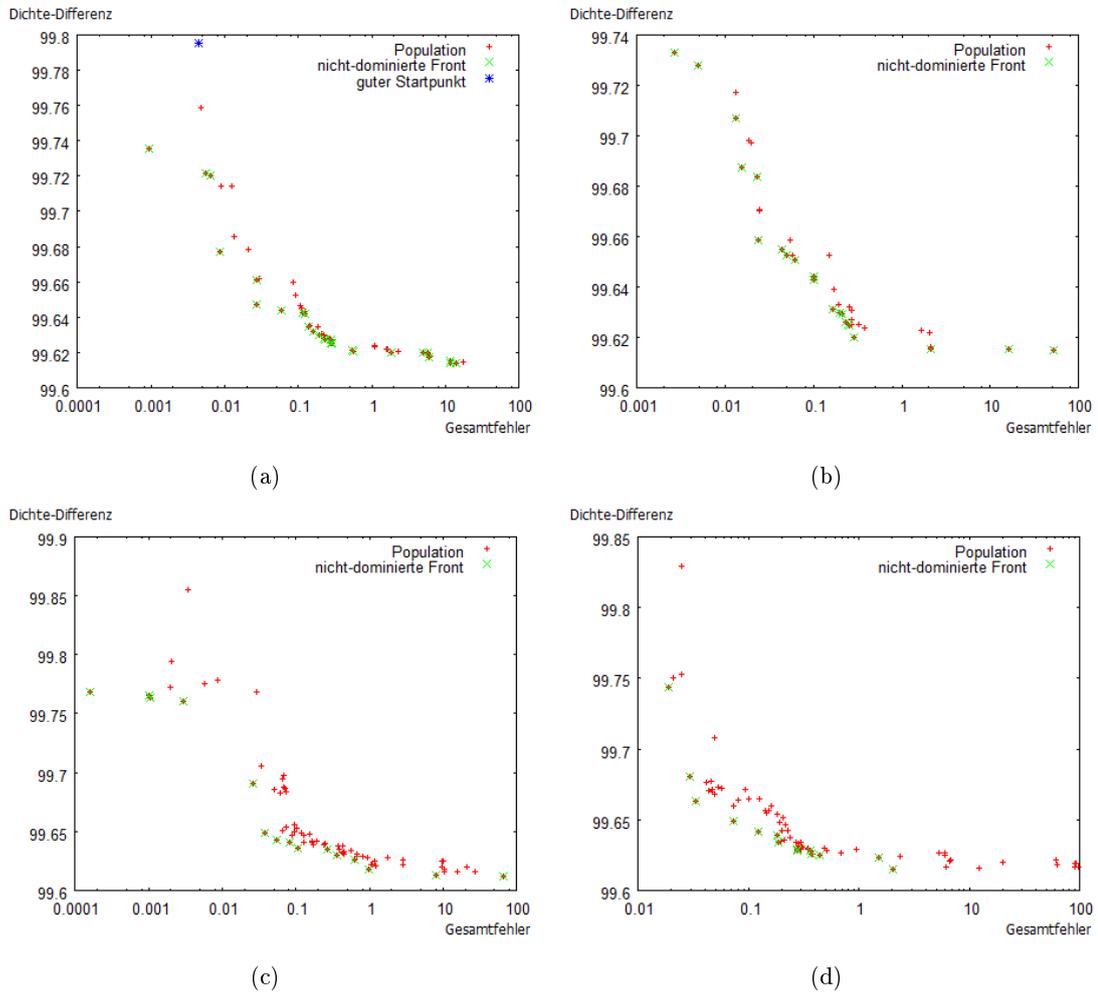


**Abbildung 5.4:** Population und nicht-dominierte Front des SMS-EMOA mit einer Populationsgröße von 30 und 1000 Iterationen für den Stoff 1-Propanol. Die Einstellungen entsprechen denen bei Wasser, das Ergebnis bei 1-Propanol liefert aber keinen guten Startpunkt.

Das der SMS-EMOA bei 1-Propanol nur ungeeignete Startpunkte liefert, deutet darauf hin, dass die Zielfunktion ein kleineres Attraktionsbasin aufweist und/oder stärker multimodal ist, wobei viele der Attraktionsbasins in trivialen Lösungen enden oder von trivialen Bereichen durchsetzt sind. Um der Multimodalität und kleineren Attraktionsbasins zu be-

<sup>2</sup>Die Individuen an den Enden der nicht-dominierten Front weisen bei 1-Propanol extreme Werte auf, weshalb diese aus den Darstellungen gefiltert wurden. Als Kriterium für den Filter wurden alle Individuen mit einem Fehler größer als 100 entfernt. Weiterhin wurde für die Ordinate eine logarithmische Skalierung gewählt.

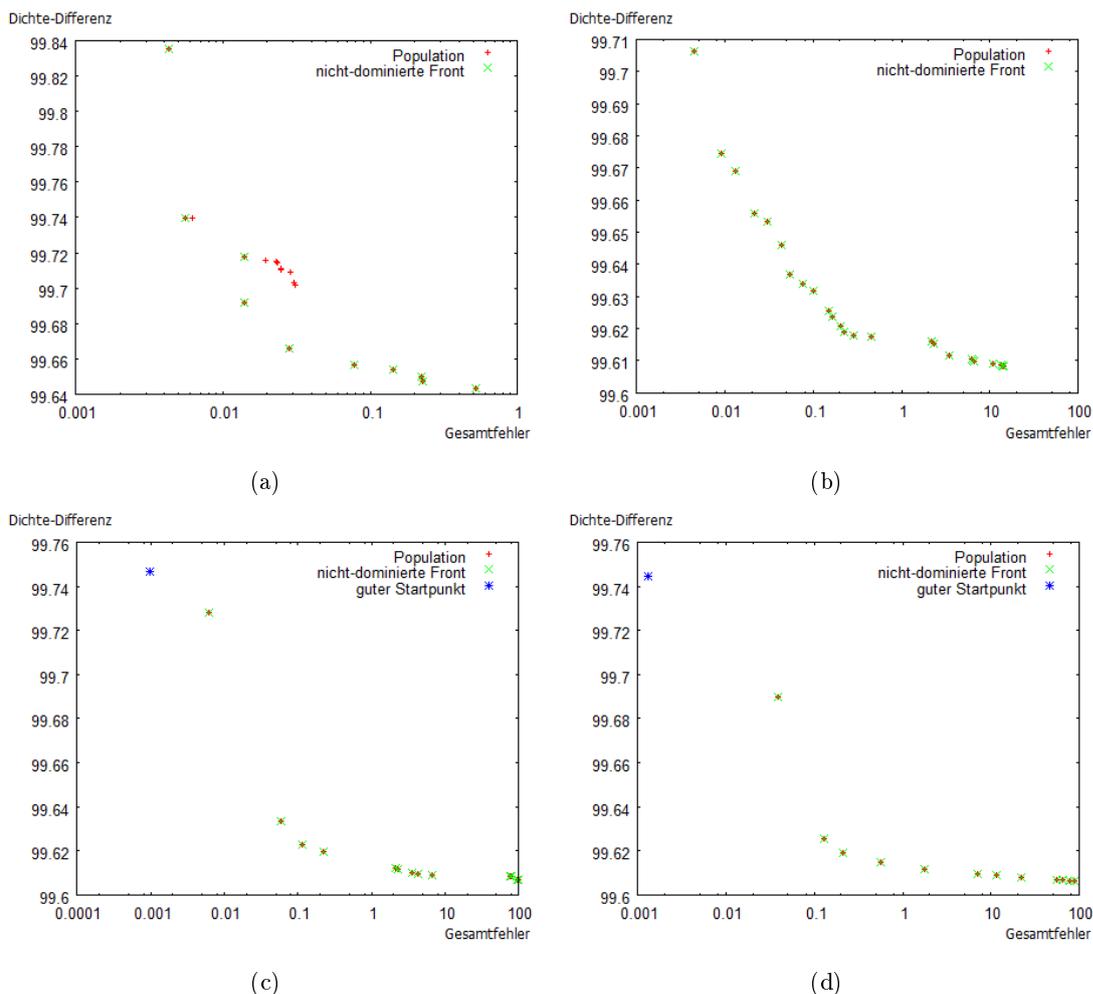
gegenen, wurde die Populationsgröße erhöht. In Abbildung 5.5 sind vier Populationen mit einer Größe von 60 ((a) und (b)) sowie 90 ((c) und (d)) dargestellt, von denen nur in (a) ein geeigneter Startpunkt gefunden wurde.



**Abbildung 5.5:** Die Grafiken zeigen vier Läufe des SMS-EMOA mit Populationsgrößen von 60 ((a) und (b)) sowie 90 ((c) und (d)). Nur in Abbildung (a) wurde ein geeigneter Startpunkt gefunden, der nicht in der Nähe der nicht-dominierten Front liegt. Die meisten Individuen weisen noch einen Abstand zur nicht-dominierten Fronten auf, so dass die Populationen eventuell noch nicht konvergiert sind.

Alleine die Erhöhung der Population erzielt also noch keinen Fortschritt. Falls die nicht-dominierte Front die Pareto-Front noch nicht hinreichend approximiert hat, was durch die Anordnung der Individuen in Abbildung 5.5 nahe gelegt wird, kann eine Erhöhung der Anzahl an Iterationen die Ergebnisse verbessern. Dazu wurden zu den Populationsgrößen 30, 60 und 90 Experimente mit einer unterschiedlichen Anzahl an Iterationen durchgeführt. Abbildung 5.6 zeigt das Ergebnis für eine Populationsgröße von 30.

Durch größere Populationen und mit einer erhöhten Anzahl an Iterationen verschiebt sich

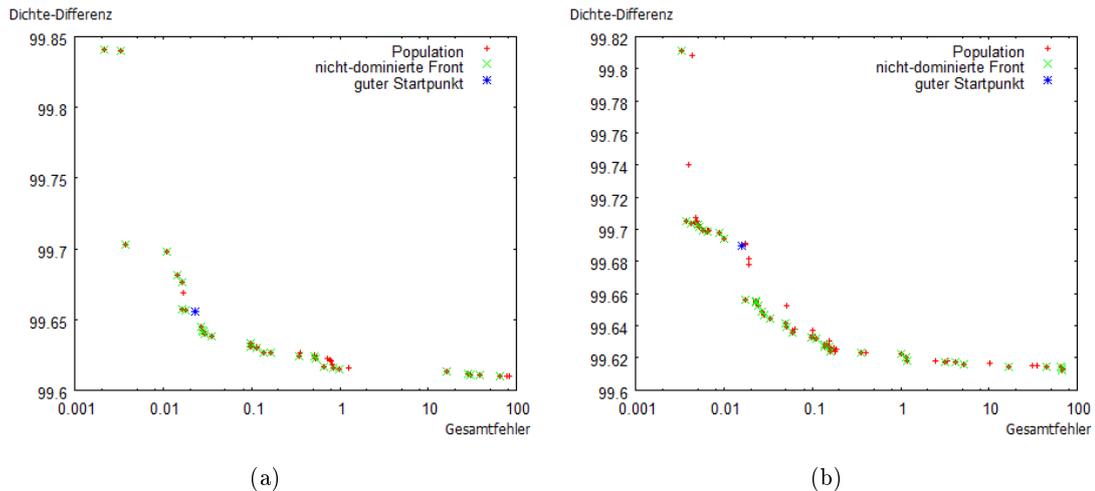


**Abbildung 5.6:** Die Grafiken zeigen die vier erfolgreichsten Läufe des SMS-EMOA ergänzend zu den Ergebnissen in Abbildung 5.4 bei 500 Iterationen in (a), 2000 in (b), 3000 in (c) und 4000 in (d) bei einer Population von 30.

der gefundene Startpunkt mehr in Richtung des Knies der nicht-dominierten Front (siehe Abbildung 5.7). Es bleibt jedoch bei einem einzelnen Erfolg, sofern überhaupt ein geeigneter Startpunkt gefunden wird.

Weitere Experimente zeigen keine Erfolge oder nur schlechtere Ergebnisse. Auffällig ist, dass insbesondere bei der geringeren Populationsgröße von 30 die geeigneten Startpunkte immer Individuen am Rand der Population sind. Diese Beobachtung zeigt, dass die Heuristik, über die Maximierung der Dichte-Differenz den größtmöglichen Abstand zu den trivialen Bereichen zu erreichen, für 1-Propanol nicht gut geeignet ist.

Nachfolgend wird der alternative Ansatz mit der Optimierung nach den einzelnen Messreihenfehlern als getrennte Ziele vorgestellt.



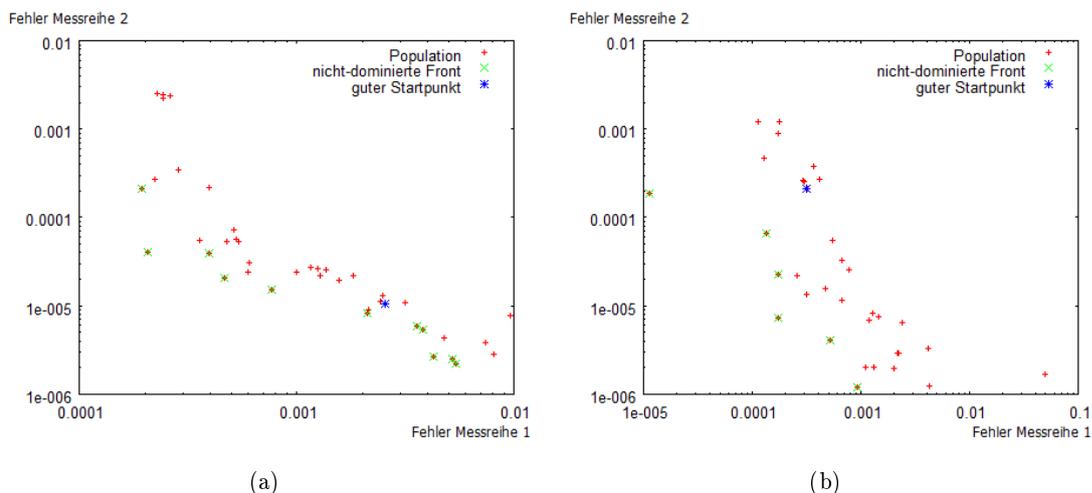
**Abbildung 5.7:** Die Grafiken zeigen beispielhaft eine Auswahl von Läufen des SMS-EMOA bei 2000 Iterationen bei einer Population von 60 in (a) sowie 90 in (b).

### 5.3.2 Messreihenfehler - Messreihenfehler

Bei der Kombination Messreihenfehler - Messreihenfehler werden die Messreihen als eigenständige Zielsetzungen verwendet. Diese Methode hat den Vorteil, dass bei der Hinzunahme weiterer Messreihen keine neue Formel für die Verrechnung der Komponenten erstellt werden muss. Dafür wird die eigentliche Abbruchbedingung für triviale Lösungen durch fast identische Dichten ignoriert und es werden ausschließlich die Fehlerwerte verwendet.

Die Untersuchung des Zusammenhangs zwischen der Populationsgröße und der Anzahl der Iterationen zeigt ähnliche Ergebnisse wie bei der Betrachtung Gesamtfehler-Dichte: Eine Populationsgröße von 60 bei 1000 Iterationen zeigt die beste Erfolgsquote in Relation zur Laufzeit. Mehr Iterationen oder größere Populationen bringen keine deutliche Steigerung der Erfolgsquote. Entsprechend wurde für die Kombination Messreihenfehler - Messreihenfehler als Parametereinstellung eine Populationsgröße von 60 bei 1000 Iterationen gewählt. Die Erfolgsquote mit diesen Parametereinstellungen liegt bei 52,4% (21 Experimente, davon 11 erfolgreich). Allerdings liegen die geeigneten Startpunkte immer in der Nähe des Knies der nicht-dominierten Front, wenn auch nicht direkt darauf, im Gegensatz zur Heuristik Gesamtfehler - Dichte, wo die geeigneten Startpunkte oft am Rand liegen. In Abbildung 5.8 sind beispielhaft zwei Populationen dargestellt. Das die geeigneten Startpunkte nicht auf der nicht-dominierten Front liegen ist überraschend, da ein möglichst geringer Fehler über alle Messreihen das Ziel der gesamten Parameteroptimierung ist.

Die Lage der geeigneten Startpunkte im Zentrum der Population kann für eine weitere Steigerung der Erfolgswahrscheinlichkeit verwendet werden: Wie bereits im Abschnitt 5.1 „Quasi-Newton Verfahren“ dargelegt wurde, reicht eine minimale Abweichung der Punkte im Suchraum, um einen geeigneten Startpunkt zu einem ungeeigneten zu machen. Die Aussicht, in der Nähe der Individuen der nicht erfolgreichen Läufe doch geeignete Start-



**Abbildung 5.8:** Die Populationen der beiden SMS-EMOA Läufe mit den einzelnen Messreihenfehlern als Kriterien zeigen, dass die Startpunkte in der Nähe des Knies der nicht-dominierten Front liegen.

punkte zu finden, ist also entsprechend hoch. Diese Erkenntnis wird für das nachfolgend beschriebene kombinierte Verfahren verwendet.

### 5.3.3 Kombination zur Erfolgssteigerung

Da die Erfolgsquoten für beide Varianten bei 1-Propanol mit 52,4%, für die Optimierung nach den Messreihenfehlern, und 46,7%<sup>3</sup>, für die Optimierung nach Gesamtfehler und Dichte, noch steigerungsfähig sind, ist eine Kombination beider Varianten entwickelt worden. Zunächst werden mit der Variante der Einzeloptimierung der Messreihenfehler die interessanten Bereiche der Zielfunktion eingegrenzt. Anschließend werden die Individuen der Population mittels Single-Linkage-Clustering zu Clustern zusammengefasst. Diese Cluster bilden den Suchraum für die weitere Suche mit dem SMS-EMOA mit der Optimierung nach dem Gesamtfehler und der Dichte-Differenz.

Die Verwendung des SMS-EMOA mit der Optimierung nach den einzelnen Messreihen ist im vorigen Abschnitt ausführlich beschrieben und diskutiert worden. Das Ergebnis ist eine Population, deren nicht-dominierte Front die Messreihen annähert. Wie in Abbildung 5.8 zu sehen ist, muss der gute Startpunkt kein Element der nicht-dominierten Front sein. Aus diesem Grund muss zur Erhöhung der Erfolgswahrscheinlichkeit die gesamte Population und nicht nur die nicht-dominierte Front weiter berücksichtigt werden. Zum Clustern der Population bestehen nun zwei Möglichkeiten: Das Clustering kann im Zielfunktionsraum

<sup>3</sup>Es wurden nur die Experimente mit einer Populationszahl zwischen 30 und 90 bei mindestens 1000 Iterationen gezählt, da bei geringeren Werten für einen der beiden Parameter keine Erfolge erzielt wurden. Eine Übersicht über alle durchgeführten Experimente kann dem Experiment-Log auf der beiliegenden CD entnommen werden.

oder alternativ im Suchraum durchgeführt werden.

Wird im Zielfunktionsraum geclustert, so werden Individuen der Population ähnlicher Güte zusammengefasst. Diese müssen aber im Suchraum nicht zwingend beieinander liegen. Sind in der Population Individuen zu zwei unterschiedlichen Optima enthalten, die im Extremfall an gegenüberliegenden Enden des Suchraums liegen, so wird über die Beschränkung des Suchraums auf den Cluster keine Verkleinerung des Suchraums erzielt. Auch kann nicht ausgeschlossen werden, dass ein gefundener Cluster im Suchraum von einem anderen Cluster vollständig umschlossen wird. Dieses kann vor dem Abstieg geprüft werden, führt aber im Extremfall dazu, dass am Ende nur ein Cluster übrig bleibt, der beinahe den gesamten ursprünglichen Suchraum umfasst.

Die Alternative ist, das Clustering auf der Population im Suchraum durchzuführen. Abbildung 2.6 zeigt, dass die uninteressanten Randbereiche der nicht-dominierten Front und deren Population im Zielfunktionsraum zum Teil extreme Werte annehmen. Der interessante Bereich konzentriert sich auf das Knie der nicht-dominierten Front. Aus diesem Grund werden mittels zweier Schwellwerte die Extrema im Zielfunktionsraum in beide Richtungen entfernt. Für die Fehler in Richtung Null hat sich  $1^{-15}$  als Schwellwert bewährt, sowie 10000 in die andere Richtung. Diese Schwellwerte sind mit ausreichendem Sicherheitsabstand gewählt: Der kleinste gefundene Wert, der nicht an den Enden der nicht-dominierten Front liegt, hatte die Größenordnung  $1^{-8}$ . In die andere Richtung sind Abweichungen größer als 100 ein erster Hinweis auf triviale Lösungen, welche nicht weiter betrachtet werden müssen.

Nachdem feststeht, was geclustert werden soll, muss ein geeignetes Clusterverfahren gewählt werden. Da im Vorfeld nicht bekannt ist, wie viele Cluster sinnvoll gebildet werden können, entfallen alle Clusterverfahren, bei denen die Anzahl der Cluster im Vorfeld festgelegt werden muss. Die Cluster werden im weiteren Verlauf des Verfahrens als eigenständiger Suchraum untersucht, dementsprechend sollte die Anzahl der Cluster aus Laufzeitgründen gering gehalten werden. Ein agglomeratives Clusterverfahren mit dem durchschnittlichen Abstand zwischen allen Elementen des Pareto-Sets erfüllt diese Bedingung: Unter der Annahme, dass die Optima, die von der Population im Suchraum abgedeckt werden, weiter voneinander entfernt sind, als die Individuen innerhalb eines Optimums, wird für jedes Optimum ein eigener Suchraum aufgespannt<sup>4</sup>. Als Clusterverfahren wurde das Single-Linkage-Clustering gewählt. Damit durch die unterschiedliche Skalierung der Dimensionen des Suchraums nicht die Dimension mit den größten Werten maßgeblich über die Cluster entscheidet, werden bei der Berechnung der Entfernung alle Komponenten mit dem Faktor skaliert, der bereits für das Quasi-Newton Verfahren in den Konfigurationsdateien enthalten ist. Um die gefundenen Cluster<sup>5</sup> als Suchraum verwenden zu können, werden deren

---

<sup>4</sup>Ist diese Annahme ungültig, so können an dieser Stelle zwei stark überlappende Cluster entstehen.

<sup>5</sup>Cluster die nur aus einem Datenpunkt bestehen werden bei der weiteren Verarbeitung ignoriert.

*Bounding Boxes*<sup>6</sup> berechnet.

Diese Bounding Boxes werden dann als Grenzen zuzüglich eines Randbereichs von 5% des Clusterdurchmessers in der jeweiligen Dimension in die Konfigurationsdateien eingetragen. Mit diesen zusätzlichen Randbereichen wird verhindert, dass bereits zuvor vom SMS-EMOA ermittelte Individuen direkt auf dem Rand des neuen Suchraums liegen. Mit den neuen Konfigurationsdateien wird dann für jeden Cluster der SMS-EMOA, diesmal mit den Zielen Gesamtfehler und Dichte-Differenz, erneut gestartet. Die Grenzen werden für die lokale Suche beim Einsatz der Individuen als Startpunkte wieder auf den ursprünglichen Wert zurückgesetzt.

Um zu vergleichen, ob ein weiterer Abstieg eine höhere Erfolgswahrscheinlichkeit aufweist als ein zusätzlicher Lauf auf dem ursprünglichen Suchraum, wurden acht nicht erfolgreiche Läufe des SMS-EMOA mit der Optimierung nach den einzelnen Messreihen als Test-Set verwendet. Davon sind die Experimente 42 und 43 mit 100 Iterationen und 30 Individuen durchgeführt worden, die übrigen Experimente mit 1000 Iterationen und einer Population von 60. In Tabelle 5.4 werden die Ergebnisse dieser Acht Testfälle dargestellt.

Experiment	Bester $M_1$	Bester $M_2$	$M_1 + M_2$	Erfolge	Cluster
42	0,5038	0,289	1,2009	44	2
43	12,3169	4,2092	16,526	1	2
46	0,5555	0,1292	1,1051	65	2
48	0,4073	0,4152	1,7532	11	1
50	0,4252	0,3113	1,2754	29	2
52	0,4128	0,2559	1,2342	18	2
53	0,4333	0,2817	1,1869	85	3
54	0,4212	0,7398	1,3601	20	2

**Tabelle 5.4:** Die Tabelle zeigt die Ergebnisse nach dem Abstieg in die Cluster des kombinierten Verfahrens für acht erfolglose Experimente der Optimierung des SMS-EMOA nach den einzelnen Messreihenfehlern. Die Experimente 42 und 43 sind im ersten Schritt mit 100 Iterationen bei einer Population von 30 durchgeführt worden, die Übrigen mit einer Population von 60 und 1000 Iterationen. Die Erfolgsquote eine Lösung zu finden, beträgt 100%. Eine Lösung mit einer Güte besser als 2% in der Summe der Messreihen wird mit einer Wahrscheinlichkeit von 87,5% gefunden. Die Nummer des Experiments entspricht der Nummer aus dem Experiment-Log auf der beiliegenden CD.

Um die in Tabelle 5.4 dargestellten Ergebnisse zu berechnen, wurde in 16 Suchräume entsprechend der Cluster mittels des SMS-EMOA abgestiegen. Jeder Abstieg wurde mit der Gesamtfehler - Dichte Heuristik mit 1000 Iterationen bei einer Population von 60 durchgeführt. Bei einer Erfolgsquote von 52,4%, wovon nur 36,36% eine Güte besser als 2%

<sup>6</sup>Rahmen die in jeder Dimension vom minimalen bis zum maximalen Wert des Clusters reichen.

erreicht haben, wäre in den 24 (8 im ersten Schritt + 16 Cluster) Läufen, die für die obige Auswertung benötigt wurden, nur 4,57 statt 7 Ergebnisse dieser Qualität gefunden worden. Die kombinierte Methode weist eine höhere Erfolgsquote beim Auffinden guter Lösungen auf, als die einzelnen Schritte bei gleicher Rechenzeit.

Die Qualität der Lösungen und deren Anzahl bei der Verwendung der Heuristik Gesamtfehler - Dichte für die einzelnen Cluster erklärt auch, warum diese Heuristik für Wasser so gut funktioniert hat und für 1-Propanol hingegen in erster Instanz kaum: Diese Heuristik streut die Individuen, und damit die Startpunkte für das Quasi-Newton Verfahren, über das Attraktionsbasin des Optimums. Durch die Dichte-Differenz wird sichergestellt, dass die Individuen nicht direkt nebeneinander liegen, wodurch die Wahrscheinlichkeit sinkt, dass mehrere Individuen während der lokalen Suche in den selben trivialen Bereich geraten. Bei Wasser funktionierte dies sofort, da dessen Attraktionsbasin beinahe den gesamten Suchraum abdeckt. Diese Situation wurde durch das Clustering für das 1-Propanol künstlich hergeleitet, so dass sich auch bei diesem Stoff die hohe Erfolgsquote mit der entsprechenden Güte einstellt.

## 5.4 Beschleunigung des Verfahrens

Um das verwendete Verfahren zu beschleunigen, kann eine Mindestgüte definiert werden, ab der eine gefundene Lösung als ausreichend akzeptiert wird. Dazu wird nach Abschluss eines SMS-EMOA Laufs die lokale Suche für jedes Individuum der Population durchgeführt. Sobald eine Lösung gefunden wurde, die die erforderliche Güte aufweist, wird der Ablauf beendet. Wird ein Stoff mit einem kleinen Attraktionsbasin untersucht, so werden fast alle Individuen triviale Lösungen erzeugen, die nur wenige Auswertungen benötigen und somit schnell sind. Bei Stoffen mit einem großen Attraktionsbasin, wie z.B. Wasser, werden viele Lösungen gefunden, was viel Zeit benötigt. Aufgrund des großen Attraktionsbasins ist jedoch bei der weiteren Einschränkung des Suchraums keine bessere Lösung zu erwarten, so dass der Abstieg in einen Teil des Suchraums eingespart werden kann. Die Experimente mit den verschiedenen Stoffen zeigen, dass bei einfachen Stoffen beinahe jedes Individuum zu einer gültigen Lösung führt, während bei kleinen Attraktionsbasins nur vereinzelte Individuen gute Startpunkte darstellen. Deshalb wird ein Abstieg bei einer Erfolgsquote von mehr als 30% unterbunden.

Zur lokalen Suche wird aufgrund der in Tabelle 5.2 dargestellten Ergebnisse das interne Quasi-Newton Verfahren verwendet. Die einzelnen Individuen der Population werden parallel verarbeitet, so dass auf Computern mit mehreren Prozessoren Zeit eingespart wird (siehe Anhang C „Handbuch jFit“).

## 5.5 Qualität der Ergebnisse

In Tabelle 5.5 sind die mit dem kombinierten, beschleunigten Verfahren ermittelten Ergebnisse für die drei zur Verfügung gestellten Teststoffe den bekannten guten Ergebnissen gegenübergestellt. Zusätzlich wird die Erfolgswahrscheinlichkeit des Verfahrens zu dem jeweiligen Stoff angegeben. Die hohe Erfolgswahrscheinlichkeit von Wasser überrascht aufgrund des großen Attraktionsbasins wenig: Selbst bei einer geforderten Mindestgüte von 0,2%, welche besser als die Güte des bekannten Parametersatzes ist, terminiert das beschleunigte Verfahren frühzeitig bereits im ersten Schritt. Der Stoff 2-Propanol scheint ein ähnlich großes Attraktionsbasin aufzuweisen, da hierbei ebenfalls bereits im ersten Schritt der Großteil der Läufe erfolgreich ist. Die beste ermittelte Lösung ist auch mit Abstand besser, als die des vorgegebenen Parametersatzes. Die Erfolgsquoten und Ergebnisse für 1-Propanol wurden in den vorherigen Kapiteln bereits ausführlich diskutiert.

	Bestes Ergebnis	Erfolgsquote	bekannte Lösung
Wasser	0,1716	100%	0,2485
2-Propanol	0,4011	100%	1,1722
1-Propanol	1,1051	87,5%	-

**Tabelle 5.5:** In der Tabelle sind die besten Lösungen mit ihrer Qualität zu den einzelnen Stoffen den bekannten guten Lösungen gegenübergestellt. Zusätzlich ist für die unterschiedlichen Stoffe die Erfolgswahrscheinlichkeit einer guten Lösung angegeben.

Wie bereits bei den Ergebnissen des Gittertests in der experimentellen Analyse herausgestellt wurde, hat Wasser nicht viele Optima und keines der Optima ist gleichwertig mit dem globalen Optimum (siehe Abbildung 4.2). Der als schwer klassifizierte Stoff 1-Propanol weist mehrere Optima von annähernd gleicher Qualität auf, wie in Tabelle 5.1 beispielhaft für einige Optima gezeigt wurde. Diese Tatsache erklärt, warum der bekannte Parametersatz<sup>7</sup> nicht die gewünschten Ergebnisse bei der weiteren Verwendung liefert: Bei mehreren in etwa gleichwertigen Lösungen müssen diese in der Kombination mit anderen Stoffen verglichen werden, um den besser geeigneten Parametersatz herauszufinden.

---

<sup>7</sup>Dieser wurde nicht zur Verfügung gestellt, da die bekannte Lösung nicht das gewünschte Verhalten in Kombination mit anderen Stoffen gezeigt hat.

## Kapitel 6

# Zusammenfassung und Ausblick

In der Diplomarbeit wurde zunächst die Zielfunktion von Wasser analysiert, da über die Zielfunktion der einzelnen Stoffe nichts bekannt war. Dazu wurden Experimente durchgeführt um gezielte Fragestellungen, die bei der Lösung des Problems helfen können, zu beantworten. Dabei wurde keine Korrelation der verschiedenen Parameter festgestellt, so dass eine Optimierung nach einzelnen Parametern in mehreren Schritten nicht durchführbar ist. Zusätzlich wurde nachgewiesen, dass die Zielfunktion des einfachen Stoffs Wasser multimodal ist, was zuvor nur vermutet wurde. Eine Übertragbarkeit der Ergebnisse eines Stoffs auf andere Stoffe ist nicht möglich, wohl aber auf andere Messreihen des gleichen Stoffs. Letztendlich wurde bei der Analyse auch bestätigt, dass sich die Position der trivialen Lösungen im Suchraum nicht vorhersagen lässt.

Mit diesem Wissen wurden verschiedene Verfahren an dem Problem getestet und deren Ergebnisse analysiert. Dazu mussten verschiedene Strategien für den Umgang mit den trivialen Lösungen entwickelt werden. Die vorliegende Fitnesslandschaft ist aufgrund der trivialen Bereiche und der Aggregation der Fehler der einzelnen Messreihen für einkriterielle Optimierungsverfahren schwer zu lernen, weshalb die CMA-ES auf diesem Problem keine überzeugenden Lösungen liefert.

Der zweistufige Ansatz, mit einem mehrkriteriellen Optimierungsverfahren gute Startpunkte für eine lokale Suche zu ermitteln, wurde mit verschiedenen Heuristiken getestet. Dazu wurden die trivialen Ausgaben aus dem Simulator entfernt, stattdessen werden die Fehler und die zur trivialen Lösung führenden Dichten separat ausgewiesen. Dadurch wird die Entscheidung, ob es sich um eine triviale Lösung handelt, aus dem Simulator in den Optimierer verlagert. Dabei wurde festgestellt, dass durch die unterschiedliche Charakteristik der Zielfunktionen der verschiedenen Stoffe die Heuristik, die Dichte-Differenz zu maximieren, die für Wasser gut funktioniert hat, für 1-Propanol nur eingeschränkt zum Erfolg führt. Die alternative Heuristik, nach den Messreihenfehlern als eigenständige Ziele getrennt zu optimieren, wies ebenfalls keine gute Erfolgsquote auf. Die Lösungen befinden sich aber immer im Zentrum der Population.

Darauf aufbauend ist ein dreistufiges Verfahren entwickelt worden, das in den ersten beiden Schritten mittels mehrkriterieller Optimierung mit unterschiedlichen Heuristiken gute Startpunkte für die lokale Suche ermittelt. Dazu wird das Ergebnis des ersten Schritts geclustert. Die Cluster bilden dann den Suchraum des zweiten Schritts, dessen Ergebnisse wiederum die Startpunkte für eine lokale Suche darstellen. Die Qualität der Lösungen ist in allen betrachteten Fällen besser als die bekannten guten Lösungen der Teststoffe. Die Laufzeit beträgt je nach Berechnung der Simulation für eine Funktionsauswertung und der Anzahl der Optima und der Größe ihres Attraktionsbasins zwischen einer Stunde und in etwa einem Tag. Die kurze Laufzeit ist durch die Möglichkeit zur frühzeitigen Terminierung begründet, die lange Laufzeit von etwa einem Tag hängt stark von der Anzahl der ermittelten Cluster ab. Im Durchschnitt werden zwei Cluster erwartet, womit die Laufzeit weniger als einen Tag beträgt. Damit sind die Ziele der Diplomarbeit erfüllt.

Aus Sicht der Thermodynamik wäre die Übertragung auf komplexere Systeme der nächste Schritt. Durch die Wahl des SMS-EMOA für die mehrkriterielle Optimierung wird ein Verfahren verwendet, was auch in hohen Dimensionen, also bei Systemen mit vielen Komponenten, gegen die Pareto-Front konvergiert, so dass eine Übertragung einfach möglich ist.

Technisch kann das entwickelte Verfahren weiter beschleunigt werden, indem der Simulator als DLL eingebunden wird, wodurch die Zugriffe auf das Dateisystem entfallen. Diese Möglichkeit benötigt jedoch eine entsprechende Routine zur Re-Initialisierung des Simulators direkt in FORTRAN. Weitere Möglichkeiten zur Beschleunigung bieten die Parallelisierung des SMS-EMOA sowie eine Reduzierung der Iterationszahl des Quasi-Newton Verfahrens. Der verwendete Algorithmus SMS-EMOA hat die Eigenschaft, sich während der Konvergenz an die Pareto-Front auf ein Optimum festzulegen. Hier könnte eine einfache Teilung der Population helfen, mehrere gefundene Optima parallel zu untersuchen. Dazu müsste nach der Aufteilung eine günstige Stelle, z.B. ein trivialer Bereich, zwischen den beiden Optima gesucht und an dieser Stelle eine trennende Hyperebene durch den Suchraum gelegt werden. Anschließend müssten beide Populationen als separate Läufe in dem jeweiligen Teilraum betrachtet und auf die voreingestellte Populationsgröße aufgefüllt werden.

# Anhang A

## Fremdsoftware

Der Anhang „Fremdsoftware“ listet sämtliche zur Erstellung der vorliegenden Diplomarbeit verwendete Software von Dritt-Anbietern auf. Soweit möglich wird ein Link zur Download-Möglichkeit und zu weiterführender Information angegeben.

### A.1 Mondrian

*Mondrian* ist ein Java basiertes Tool zur Visualisierung statistischer Daten und auf vielen Betriebssystemen verfügbar. Die Daten werden in einfachen Tabulator getrennten Textdateien akzeptiert oder können direkt aus Datenbanken gelesen werden. Die einfache Bedienung von *Mondrian* eignet sich im Gegensatz zu komplexeren Visualisierungstools insbesondere für einen ersten Überblick. Im Fall hoch-dimensionaler Daten bietet *Mondrian* mit den Parallelkoordinaten (siehe Abschnitt 2.4.1) und der Scatterplot Matrix (siehe Abschnitt 2.4.2) sehr aussagekräftige Diagramme. Alle Parallelkoordinaten und Scatterplots in dieser Diplomarbeit wurden mit *Mondrian* erstellt.

*Mondrian* wurde erstmals von Martin Theus in seinem Artikel „*Interactive Data Visualization using Mondrian*“ [41] vorgestellt und steht unter der *GNU General Public License* [22]. Mehr Informationen zu *Mondrian* sowie die Software können über die offizielle Homepage <http://rosuda.org/mondrian/> erlangt werden.

### A.2 gnuplot

*gnuplot*<sup>1</sup> ist ein Kommandozeilen-basierter Funktionenplotter. Trotz des Namens ist *gnuplot* nicht unter der *GNU General Public License* [22] erschienen sondern Freeware. *gnuplot* ist frei verfügbar, darf aber nicht beliebig modifiziert und verbreitet werden. Es wird auch kein offizieller Support angeboten.

---

<sup>1</sup>Der Name des Programms lautet *gnuplot*, der Autor verweist in der FAQ absichtlich auf die Kleinschreibung.

Weitere Informationen zu *gnuplot* sowie die Software können auf der offiziellen Homepage <http://www.gnuplot.info/> erlangt werden. In der vorliegenden Diplomarbeit wurde *gnuplot* zur Visualisierung aller zwei- und dreidimensionalen Funktionen verwendet.

### A.3 NOBELTJE PG Paket

Als Implementierung des SMS-EMOA (siehe Abschnitt 2.2.4.3) sowie der  $\mathcal{S}$ -Metrik wurde das *NOBELTJE* (*N-Objective Evolutionary Learning-Tool in a Java Environment*) Paket der Projektgruppe 447 der Technischen Universität Dortmund gewählt. Das Software Paket implementiert neben dem in der Diplomarbeit verwendeten *Reduce*-Operator weitere optionale Möglichkeiten, die über Parameter steuerbar sind.

Details der Implementierung, das Software Paket sowie der Endbericht [4] der Projektgruppe 447 können auf der Homepage <http://ls11-www.cs.uni-dortmund.de/lehre/pg447/> heruntergeladen werden.

### A.4 CMA-ES

Für die CMA-ES (siehe Abschnitt 2.2.4.2) wurde die Java Implementierung verwendet, die Nikolaus Hansen auf seiner Homepage <http://www.lri.fr/~hansen/cmaesintro.html> neben Implementierungen in anderen Programmiersprachen zur Verfügung stellt.

Mehr zur Arbeit von Nikolaus Hansen ist auf seiner Homepage <http://www.lri.fr/~hansen/index.html> der Universite Paris-Sud zu finden.

### A.5 PC-SAFT Simulator

Der Simulator PC-SAFT wurde vom Lehrstuhl für Thermodynamik der Technischen Universität Dortmund zur Verfügung gestellt. Der Aufbau des Simulators sowie die wesentlichen Routinen und deren Aufgaben wurden in Abschnitt 3.2 ausführlich beschrieben. Weitere Informationen zum Simulator, den verwendeten Routinen und der Theorie des PC-SAFT Modells kann dem Bereich PC-SAFT der Homepage des Lehrstuhls <http://www.th.bci.tu-dortmund.de/de/forschung/pc-saft> entnommen werden.

# Anhang B

## Parametersätze

In diesem Kapitel werden die Ein- und Ausgabe-Schnittstellen des Simulators PC-SAFT auf der Datei-Ebene beschrieben. Zusätzlich wird der Suchraum für die drei untersuchten Stoffe angegeben. Die manuell ermittelten Parametersätze und deren Ergebnisse zu den Teststoffen sowie alle experimentell ermittelten Ergebnisse werden auf der beiliegenden CD bereitgestellt.

### B.1 Suchraum

In der Diplomarbeit sind Angaben in Bezug auf die Größe des Suchraums gemacht worden. Deshalb wird der Suchraum für die drei Teststoffe in einer Übersicht angegeben.

Stoff	m_seg		seg_d		eps		eps_hb		k_assoc	
	von	bis	von	bis	von	bis	von	bis	von	bis
Wasser	1	4	1	5	100	500	500	3000	0,001	0,4
1-Propanol	1	4	1	4	100	350	500	3500	0,0001	0,1
2-Propanol	1	4	1	6	100	500	500	3000	0,001	0,2

**Tabelle B.1:** Suchraum der drei Teststoffe.

### B.2 Dateiformat der Eingabe

Bei der Eingabe muss wie in Abschnitt 3.2 beschrieben, zwischen der Eingabe der *parameter database* und der Eingabe der Messreihen unterschieden werden.

**Messreihen:** Die Messreihen werden in einer eigenen Datei bereitgestellt. Die Meta-Angaben zu einer Messreihe setzen sich aus der Phase, in der gemessen wurde, und dem Stoff, auf den sich die Messreihe bezieht, zusammen. Im Anschluss an die Meta-Angaben folgt die eigentliche Messreihe, welche aus drei Komponenten besteht: Der Temperatur, bei

der die Messung durchgeführt wurde, dem Dampfdruck, der bei dieser Temperatur vorliegt, und der gemessenen Dichte. Jede Datenreihe endet mit den Werten 0, 0, 0 als Messpunkt. Werden weitere Messreihen angegeben, beginnt der soeben beschriebene Aufbau nach einer Leerzeile erneut. Tabelle B.2 zeigt beispielhaft einen Auszug aus den verwendeten Messreihen zu Wasser.

vle 1		
Water 1		
data_row 0		
273.15	6.1466E-03	1031.662994
278.15	8.7744E-03	1027.897484
283.15	1.2348E-02	1024.106492
288.15	1.7146E-02	1020.289446
293.15	2.3507E-02	1016.445756
298.15	3.1843E-02	1012.574806
303.15	4.2646E-02	1008.675961
308.15	5.6500E-02	1004.748559
313.15	7.4094E-02	1000.791912
...		
473.15	1.5527E+01	852.4233241
0	0	0
den 1		
Water 1		
data_row 0		
273.15	1.0000E+00	1031.662994
278.15	1.0000E+00	1027.897484
283.15	1.0000E+00	1024.106492
288.15	1.0000E+00	1020.289446
293.15	1.0000E+00	1016.445756
298.15	1.0000E+00	1012.574806
303.15	1.0000E+00	1008.675961
308.15	1.0000E+00	1004.748559
313.15	1.0000E+00	1000.791912
...		
473.15	1.5527E+01	852.4233241
0	0	0

**Tabelle B.2:** Auszug aus den Messreihen für Wasser.

Die vollständige Messreihe sowie die alternativen Messreihen des VDI für Wasser und die der anderen Stoffe sind auf der beiliegenden CD enthalten.

**Parameterdateien:** Der Aufbau der Parameterdateien besteht zum Einen aus der Angabe des Stoffs und aus dessen Reinstoffeigenschaften und zum Anderen aus den Wechselwirkungsspezifikationen  $k_{ij}$  bei der Betrachtung von Mehrkomponentensystemen. Die Stoffeigenschaften sind der Name des Stoffs und dessen Beschaffenheit. Die Reinstoffparameter sind fünf-Tupel bestehend dem Startwert, einem Schalter aus  $\{0; 1\}$ , der angibt, ob dieser Parameter angepasst werden soll, der unteren und der oberen Grenze und der Schrittweitengewichtung für das Quasi-Newton Verfahren. In Tabelle B.3 ist beispielhaft

der bekannte gute Parametersatz für Wasser angegeben.

```

Water
solvt
1 1
18.015      0  0      1000  1
1.06        1  1       4    10
3           1  1       5    10
366         1  100     500   100
2500.6706   1  500     3000  100
0.0348679836 1  0.001  0.4   10000
1           0  0       0     1
1           0  0       0     1
0           0  0       0     1
0           0  0       0     1
0           0  0       0     1
0           0  0       0     1
0           0  0       0     1
0           0  0       0     1
0           0  0       0     1
0           0  0       0     1
0           0  0       0     1
lkij-fitting- this line will be discarded(comp1, comp2, kijx,
kijb, kijfit(1=fit only kijb, 2=fit kijx and kijb), lbx, lbb, ubx, ubb, gain

```

**Tabelle B.3:** Parameterdatei für Wasser. Der bekannten gute Startpunkt ist in den aktuellen Werten eingetragen.

Die Reihenfolge der Parameter entspricht von oben nach unten beginnend mit der molaren Masse 18.015: `m_seg`, `seg_d`, `eps`, `eps_hb` und `k_assoc`, welche bereits im Kapitel 3.2.1 „Eingaben“ beschrieben wurden, da dies die anzupassenden Parameter sind. Weitere Parameter sind die Anzahl der H-Spender, die Anzahl der H-Empfänger, der Dipol-Moment, der Quattropol-Moment, vier PH-Wert bezogene Größen, die Schmelztemperatur und die Schmelzenthalpie. Alle diese Eigenschaften sind durch das Molekül des betrachteten Stoffs fest vorgegeben.

Die Parameterdateien zu den anderen Stoffen sind auf der beiliegenden CD enthalten.

## B.3 Dateiformat der Ausgabe

Das Format der Ausgabedateien des Simulators kann in das Format für unzulässige und das für zulässige Lösungen gegliedert werden.

**Unzulässige Lösungen:** Wird bei der Berechnung der Fugazitätskoeffizienten für zwei Phasen die gleiche Dichte berechnet, so wird in der ursprünglichen Version des Simulators oder bei aktiviertem Quasi-Newton Verfahren eine triviale Ausgabe erzeugt. Die erste Zeile gibt als Textzeile nur wieder, dass es sich um eine triviale Lösung handelt. Die zweite Zeile gibt die Dichte-Differenz an, die in dem Beispiel in Tabelle B.4 deutlich unter dem Schwellwert von  $10e^{-10}$  liegt. Der dritte Wert gibt die Iteration an, in der die triviale Lösung aufgetreten ist.

```
Trivial solution. Stopped here.  
2.710505431213761E-020  
28
```

**Tabelle B.4:** Ausgabedatei einer trivialen Lösung, aufgetreten in der Iteration 28 des Quasi-Newton Verfahrens während des Gittertests von Wasser.

**Zulässige Lösung:** Das Ausgabeformat für die zulässigen Lösungen gibt es in verschiedenen Versionen: Wenn das Quasi-Newton Verfahren aktiviert ist, dann wird eine einfache Fassung verwendet, die nur den absoluten Fehler für die einzelnen Messreihen ausweist. Bei der erweiterten Fassung bei deaktiviertem Quasi-Newton Verfahren wird zusätzlich der quadratische Fehler für die einzelnen Messreihen sowie die Dichten der einzelnen Phasen ausgegeben. Die Ermittlung, ob es sich um eine triviale Lösung handelt, obliegt damit dem eingesetzten Optimierer. Zusätzlich zu den Ausgaben bezüglich der Güte des Ergebnisses wird der Stoff benannt und die ermittelten Werte der Reinstoffeigenschaften angegeben. Tabelle B.5 zeigt eine erweiterte Ausgabedatei einer gültigen Lösung für den Stoff Wasser.

```

fit_res
Water
    mm  0.18015000E+02
    m_seg  0.25090857E+01
    d0ij  0.22254271E+01
    uij  0.32333991E+03
    eps_hb  0.59606724E+03
    k_assoc  0.31434936E+00
    nassoc_typ  0.10000000E+01
    nassoc_typ  0.10000000E+01
    mue_D  0.00000000E+00
    Q_mom  0.00000000E+00
    K_1  0.00000000E+00
    K_2  0.00000000E+00
    dh_proto_1  0.00000000E+00
    dh_proto_2  0.00000000E+00
    T_melt  0.00000000E+00
    dH_melt  0.00000000E+00
Dataset mean_error_sqared
    1  7.428715193801875E-006
    2  1.811305351627428E-004
Dataset mean_error
    1  1.20097823066216
    2  8.61550178358122
densities
0.361015001359056
3.441899482802014E-003

```

**Tabelle B.5:** Ausgabedatei einer gefundenen gültigen Lösung für Wasser. Diese erweiterte Dateiversion wird für die Ermittlung der Startpunkte im SMS-EMOA verwendet. Im Gegensatz zu der einfachen Version, wie sie bei aktiviertem Quasi-Newton Verfahren verwendet wird, enthält diese Fassung zusätzlich die Quadratfehler und die Dichten der einzelnen Phasen.



# Anhang C

## Handbuch jFit

### C.1 Installation

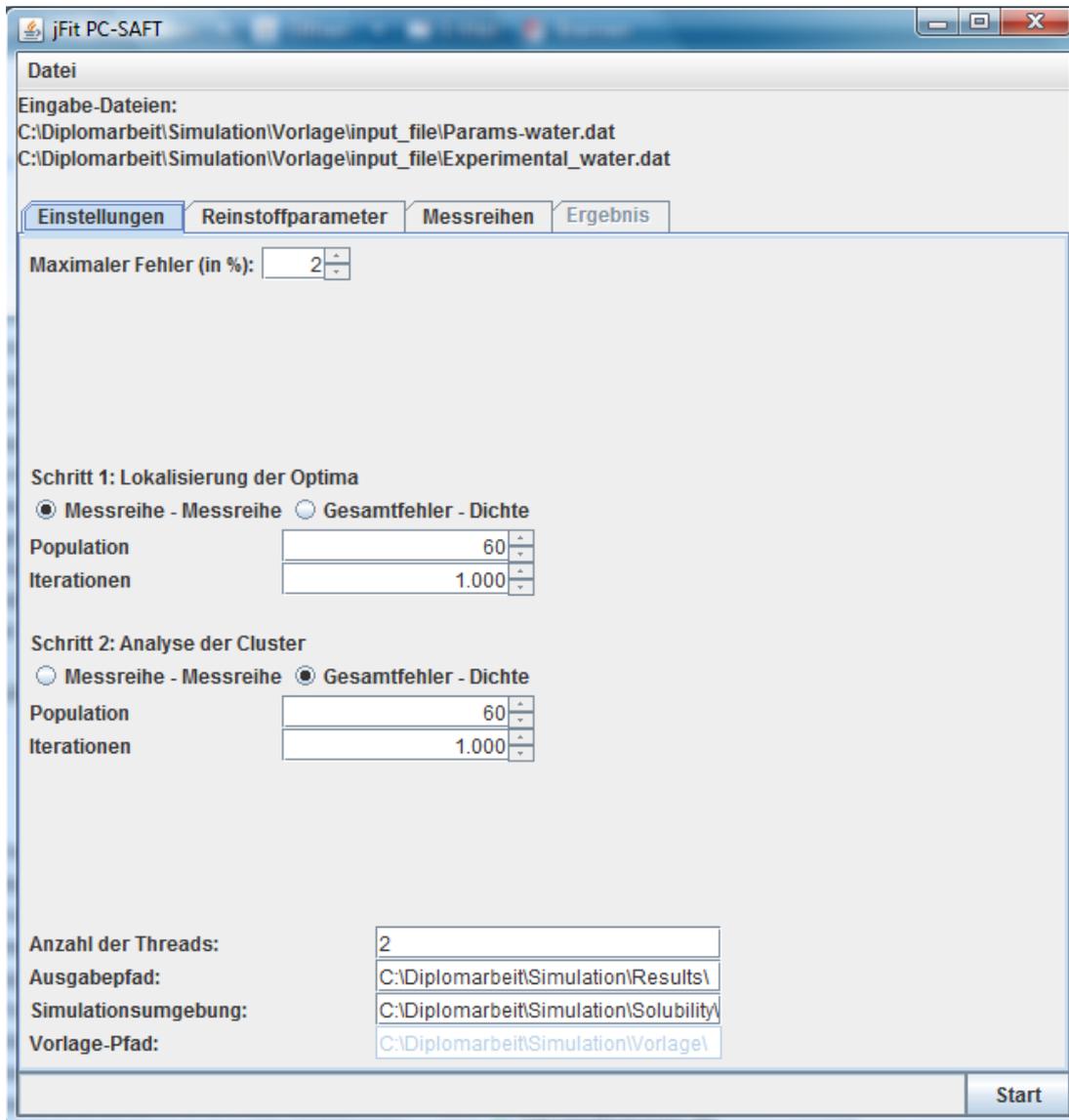
Auf der CD befindet sich das Verzeichnis *jFit*, welches alle benötigten Dateien enthält. Im Hauptverzeichnis findet sich die Startdatei *jFit.jar*. Dazu gehören die Unterverzeichnisse *Vorlage*, *Results* und *Solubility*. Das gesamte Verzeichnis *jFit* muss auf die Festplatte kopiert werden. Im Verzeichnis *Vorlage* befinden sich der Simulator in den verschiedenen benötigten Versionen, sowie der Unterordner *input\_file*, in welchem die Konfigurationsdateien für den Simulator enthalten sind. Analog zum Ordner *input\_file* existiert ein Ordner *output\_file* für die direkte Ausgabe der Ergebnisdatei des Simulators.

Die Parameter- und Messreihen-Dateien können so verwendet werden, wie dies bisher am Lehrstuhl für Thermodynamik geschehen ist. Der einzige Unterschied ist, dass die Datei *modelpar.tmp* nun *vorlage\_modelpar.tmp* heißt. Der Grund dafür ist, dass für jeden verwendeten Thread ein separater Ordner für die Simulation aus dem *Vorlage*-Ordner erstellt wird. Als Standard-Einstellung werden diese Ordner im Unterordner *Solubility* erstellt. Dies kann jedoch in der Oberfläche geändert werden. Der *Results*-Ordner enthält nach der Ausführung die Ergebnis-Dateien aller durchgeführten lokalen Suchen. Auch dieser Ordner kann in der Oberfläche geändert werden. Wird einer der Ordner geändert, so muss sichergestellt sein, dass der Benutzer auf dem entsprechenden Ordner Schreib-Rechte besitzt.

### C.2 Anpassung der Parameter

Wird *jFit* mittels *jFit.jar* gestartet, so erscheint der in Abbildung C.1 dargestellte Bildschirm. Unterhalb des Datei-Menüs werden die geladene Parameter- sowie die Messreihen-Datei angezeigt. Diese wurden der *vorlage\_modelpar.tmp* Datei im Unterordner *Vorlage/input\_file* entnommen.

Auf der Karteikarte Einstellungen kann der maximal gewünschte Fehler angegeben werden. Diese Angabe ist für das beschleunigte Verfahren notwendig und beendet die Suche nach



**Abbildung C.1:** Startseite von *jFit*. Auf dieser Seite können die Einstellungen für das kombinierte Verfahren gemacht werden.

einem Parametersatz, sobald eine Lösung der gewünschten Güte gefunden wurde. Bei den Einstellungen für „Schritt 1: Lokalisierung der Optima“ und „Schritt 2: Analyse der Cluster“ kann der SMS-EMOA für eine der beiden Heuristiken konfiguriert werden. Zusätzlich kann die Populationsgröße und die Iterationszahl angegeben werden. Als Voreinstellung wurden die in der Diplomarbeit als erfolgreich herausgearbeiteten Einstellungen gesetzt. In den Einstellungen kann im unteren Bereich der Karteikarte die Anzahl der zu verwendenden Threads eingestellt werden. Der SMS-EMOA ist wie bereits zuvor beschrieben nicht parallelisiert, die lokale Suche mit dem Quasi-Newton Verfahren hingegen schon. Die Standard-Einstellung entspricht zwei, da die meisten modernen Computer über zwei Kerne verfügen. Der Ausgabepfad gibt an, wo die Ergebnis-Dateien der lokalen Suche gespeichert

werden sollen. Der Pfad für die Simulationsumgebung gibt an, wo die Verzeichnisse für die einzelnen Threads erstellt werden sollen.

Die Standardeinstellungen sind so gewählt, dass für die in *vorlage\_modelpar.tmp* eingetragenen Dateien des zu untersuchenden Stoffs die Parameteranpassung direkt mit dem *Start*-Button am rechten unteren Rand gestartet werden kann.

Die Karteikarte „Reinstoffparameter“ bietet eine grafische Oberfläche zur Bearbeitung der Parameterdateien (siehe Abbildung C.2).

**Datei**

**Eingabe-Dateien:**  
 C:\Diplomarbeit\Simulation\Vorlage\input\_file\Params-water.dat  
 C:\Diplomarbeit\Simulation\Vorlage\input\_file\Experimental\_water.dat

**Einstellungen** **Reinstoffparameter** **Messreihen** **Ergebnis**

Parameter	Wert	Anpassen?	untere Grenze	obere Grenze	Skalierung
Mol	18.015	0.0	0.0	1000.0	1.0
Segmentzahl	1.06	1.0	1.0	4.0	10.0
Seg.Durchm.	3.0	1.0	1.0	5.0	10.0
Eps	366.0	1.0	100.0	500.0	100.0
Eps_hb	2500.6706	1.0	500.0	3000.0	100.0
kassoc	0.0348679836	1.0	0.0010	0.4	10000.0
H-Spender	1.0	0.0	0.0	0.0	1.0
H-Empfänger	1.0	0.0	0.0	0.0	1.0
Dipol	0.0	0.0	0.0	0.0	1.0
Quattropol	0.0	0.0	0.0	0.0	1.0
PH1	0.0	0.0	0.0	0.0	1.0
PH2	0.0	0.0	0.0	0.0	1.0
PH3	0.0	0.0	0.0	0.0	1.0
PH4	0.0	0.0	0.0	0.0	1.0
Sch.Temperatur	0.0	0.0	0.0	0.0	1.0
Sch.Enthalpie	0.0	0.0	0.0	0.0	1.0

!kij-fitting- this line will be discarded(comp1, comp2, kijx, kijb, kijfit(1=fit only kijb, 2=fit kijx and kijb), lbx

**Start**

**Abbildung C.2:** Grafische Oberfläche zur Bearbeitung der Parameterdatei.

Analog können auf der Karteikarte „Messreihen“ die Messreihen direkt aus *jFit* heraus bearbeitet werden (siehe Abbildung C.3).

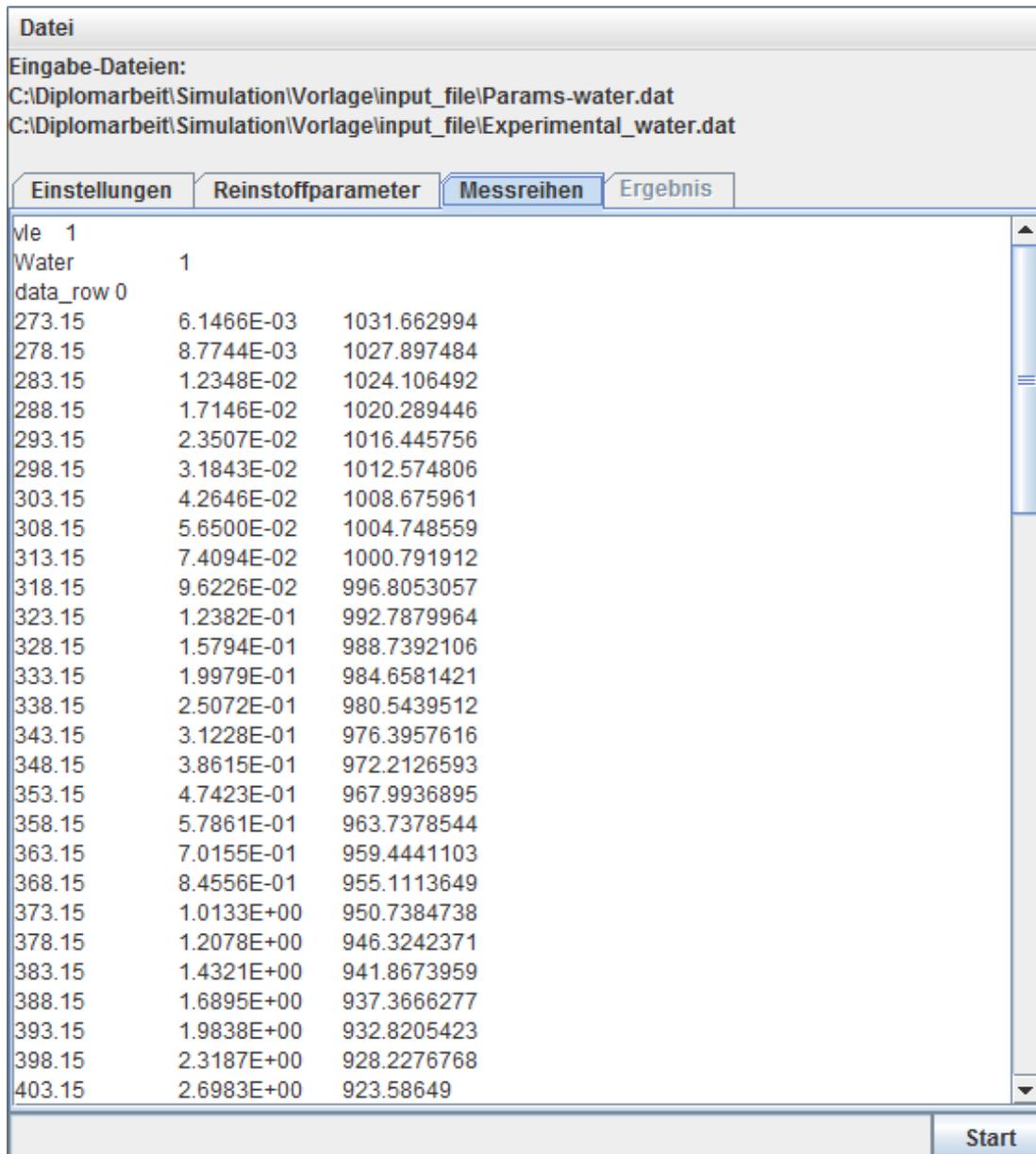


Abbildung C.3: Grafische Oberfläche zur Bearbeitung der Messreihen.

Sollen andere Parameter oder Messreihen verwendet werden, so kann über das Dateimenü eine neue Datei geöffnet oder gespeichert werden. Beim Speichern der Datei ist zu beachten, dass diese im Order *Vorlage/input\_file* gespeichert wird, damit diese auch als eigenständige Kopie für die einzelnen Threads vorliegt, wenn das Verfahren gestartet wird. Abbildung C.4 zeigt die Menüleiste.

Wird das Verfahren gestartet, so wird die Ergebnis-Karteikarte aktiviert und alle anderen Interaktionsmöglichkeiten deaktiviert. Der bisher freie Platz neben dem *Start*-Button, der als *Stopp*-Button das Verfahren wieder anhalten kann, dient nun als Fortschrittsanzeige wie in Abbildung C.5 zu sehen ist. Die Beschriftung der Fortschrittsanzeige zeigt den aktuellen



**Abbildung C.4:** Über das Dateimenü von *jFit* können Parameter- und Messreihen-Dateien geladen und wieder gespeichert werden.

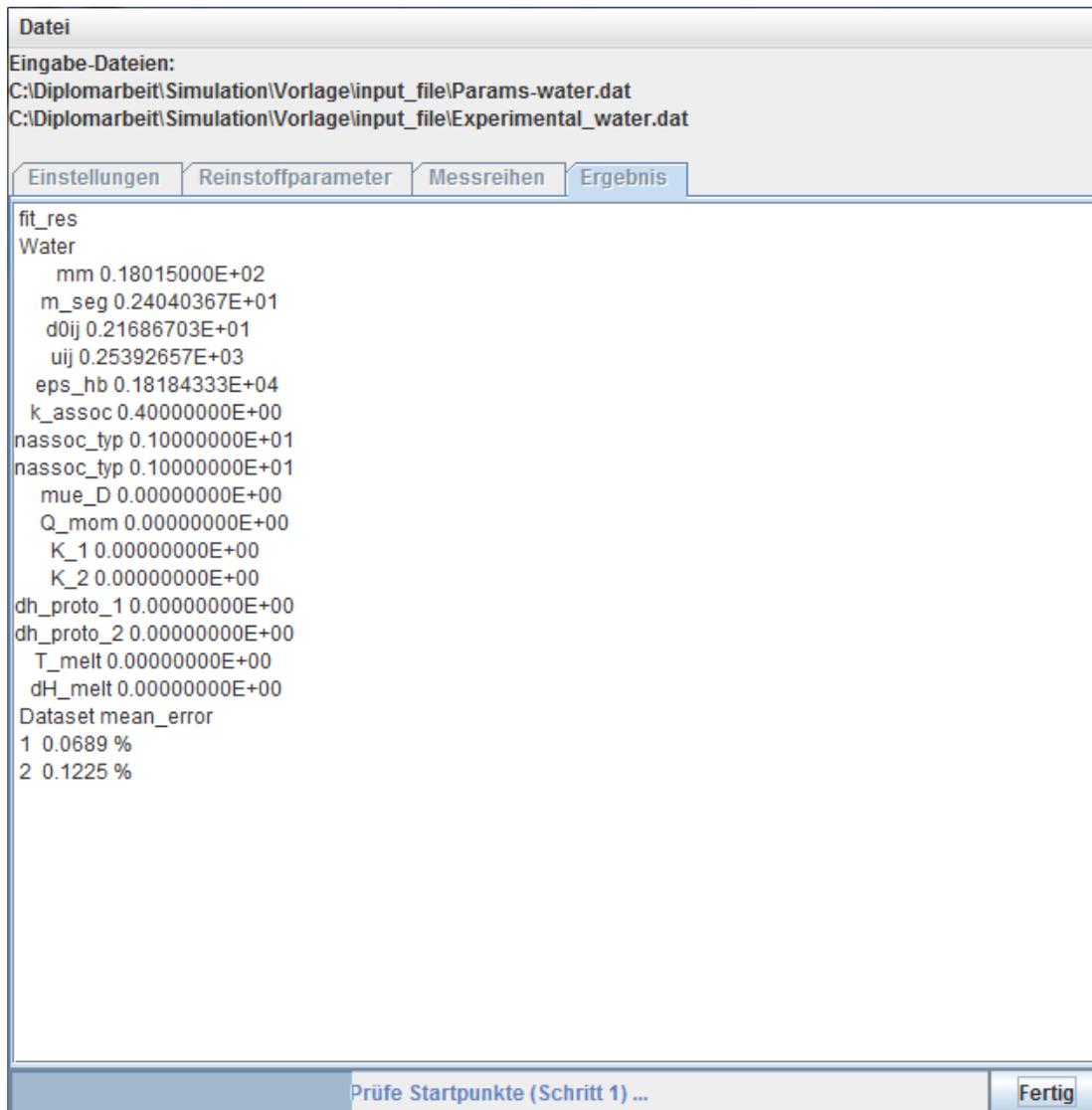
Bearbeitungsschritt des kombinierten Verfahrens an. Der Fortschrittsbalken bezieht sich nur auf diesen Schritt, da z.B. die Anzahl der Cluster im Voraus nicht bekannt ist und die einzelnen Bearbeitungsschritte sich in der Laufzeit stark unterscheiden.



**Abbildung C.5:** Die Beschriftung der Fortschrittsanzeige zeigt den aktuellen Bearbeitungsschritt des Verfahrens an. Der angezeigte Fortschrittsbalken bezieht sich nur auf diesen Schritt.

Ist das Verfahren beendet, so wird auf der Ergebnis-Karteikarte die beste gefundene Lösung angezeigt. Mit einem Klick auf den Button *Fertig* wird die Interaktion für *jFit* wieder freigeschaltet. Abbildung C.6 zeigt ein Ergebnis für Wasser.

Wie an dem Fortschrittsbalken zu sehen ist, wurde das Verfahren frühzeitig beendet, da eine Lösung gefunden wurde, die der geforderten Mindestgüte entspricht. Im Ausgabepfad können nach Abschluss des Verfahrens die Ergebnisse aller gestarteten lokalen Suchen eingesehen werden. Die Ergebnisdateien weisen ein bestimmtes Format des Dateinamens auf. Dieser beginnt immer mit dem Stoff, gefolgt von „\_p1\_“ und dem zugehörigen Wert. Die Eins steht dabei für den Parameter Eins in der Parameterdatei, beginnend mit Null. Also gibt „\_p1\_“ den Startwert des ersten Parameters  $m\_seg$  an. Der Zielwert des Parameters nach der lokalen Suche ist wie bereits beschrieben in der Ergebnisdatei enthalten.



**Abbildung C.6:** Ist das Verfahren beendet, so wird das beste Ergebnis auf der Ergebnis-Karteikarte angezeigt. Der Fortschrittsbalken zeigt noch den Status des Verfahrens an, bei dem wegen eines Ergebnisses, welches die geforderte Qualität erreicht, frühzeitig beendet wurde.

# Abbildungsverzeichnis

2.1	<i>PT-Diagramm</i> für Wasser. . . . .	12
2.2	Beispiel zum PC-SAFT Kugelmodell . . . . .	15
2.3	Beispiel einer multimodalen Funktion . . . . .	17
2.4	Schema der Blackbox-Optimierung . . . . .	19
2.5	Spinnennetzdiagramm zur Unvergleichbarkeit von Lösungen . . . . .	20
2.6	Beispiel einer nicht-dominierten Front für 1-Propanol . . . . .	21
2.7	Visualisierung der $\mathcal{S}$ -Metrik . . . . .	22
2.8	Beispiel zu Straf- und Barrierefunktionen . . . . .	24
2.9	Beispiel zur Erklärung des Newton-Verfahrens . . . . .	30
2.10	Form des Hyperellipsoiden bei der CMA-ES . . . . .	31
2.11	Beispiele für Evolutionspfade . . . . .	31
2.12	Unterschiede in der Erkennung von Clustern . . . . .	35
2.13	Parallelkoordinaten zu Wasser mit einer Mindestgüte von 10% . . . . .	37
2.14	Scatterplot-Matrix zu Wasser mit einer Mindestgüte von 10% . . . . .	38
3.1	Flussdiagramm des Simulators PC-SAFT . . . . .	44
3.2	Überanpassung bei verrauschten Messreihen . . . . .	46
4.1	Scatterplot-Matrix des Gittertests für Wasser ohne Quasi-Newton . . . . .	51
4.2	Parallelkoordinaten des Gittertests für Wasser mit Quasi-Newton . . . . .	52
4.3	Größe des Attraktionsbasins von Wasser . . . . .	53
4.4	Gegenüberstellung der Messreihen von Wasser . . . . .	55
5.1	CMA-ES mit Resampling in trivialen Bereichen . . . . .	60
5.2	Beispiel der Straffunktion zur CMA-ES . . . . .	61
5.3	Populationen des SMS-EMOA mit der Heuristik Dichte-Gesamtfehler für Wasser . . . . .	65
5.4	Übertragung der SMS-EMOA Einstellungen von Wasser auf 1-Propanol . . . . .	66
5.5	Ergebnisse des SMS-EMOA mit Dichte-Gesamtfehler für 1-Propanol bei Populationsvergrößerung . . . . .	67

5.6	Ergebnisse des SMS-EMOA mit Dichte-Gesamtfehler für 1-Propanol bei unterschiedlicher Anzahl an Iterationen . . . . .	68
5.7	Ergebnisse des SMS-EMOA mit Dichte-Gesamtfehler für 1-Propanol bei 2000 Iterationen und Populationsgrößen von 60 und 90 . . . . .	69
5.8	Ergebnisse des SMS-EMOA nach Messreihenfehlern für 1-Propanol . . . . .	70
C.1	Handbuch: Karteikarte Einstellungen . . . . .	86
C.2	Handbuch: Karteikarte Reinstoffparameter . . . . .	87
C.3	Handbuch: Karteikarte Messreihen . . . . .	88
C.4	Handbuch: Menüleiste . . . . .	89
C.5	Handbuch: Fortschrittsanzeige . . . . .	89
C.6	Handbuch: Anzeige des Ergebnisses . . . . .	90

# Algorithmenverzeichnis

2.1	Schema für einen evolutionären Algorithmus . . . . .	27
2.2	Schema der CMA-ES . . . . .	33
2.3	Schema des SMS-EMOA . . . . .	34
2.4	Schema des Single Linkage Clustering . . . . .	36



# Literaturverzeichnis

- [1] BAEHR, HANS DIETER und STEPHAN KABELAC: *Thermodynamik: Grundlagen und technische Anwendungen*. Springer, Berlin, Heidelberg, 12. Auflage, 2005.
- [2] BEIERLE, CHRISTOPH und GABRIELE KERN-ISBERNER: *Methoden wissensbasierter Systeme*. Friedr. Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft, Wiesbaden, 2006.
- [3] BERTIN, JACQUES: *Graphische Semiologie: Diagramme, Netze, Karten*. de Gruyter, Berlin, 1974.
- [4] BEUME, NICOLA, MATTHIAS BRINKMANN, TORSTEN LICKFELD, MICHAEL JANAS, RALF KOSSE, JENS KOSSEK, HENDRIK NOOT, MIRIAM PADBERG, DANIEL SALT-MANN, BENEDIKT SCHULTEBRAUCKS, KAY THIELMANN, IGOR TIPURA, THOMAS BARTZ-BEIELSTEIN, JÖRN MEHNEN, TIM RICHARD und KARLHEINZ SCHMITT: *Abschlussbericht Projektgruppe 447: Metaheuristiken zur mehrkriteriellen Optimierung*, 05.09.2009. <http://ls11-www.cs.uni-dortmund.de/lehre/pg447/>.
- [5] BEUME, NICOLA, BORIS NAUJOKS und MICHAEL EMMERICH: *An EMO algorithm using the hypervolume measure as selection criterion*. Evolutionary Multi-Criterion Optimization (EMO), Seiten 62–76, 2005.
- [6] BEUME, NICOLA, BORIS NAUJOKS und MICHAEL EMMERICH: *SMS-EMOA: Multi-objective selection based on dominated hypervolume*. European Journal of Operational Research, 181(3):1653–1669, 2007.
- [7] BEYER, HANS-GEORG: *The Theory of Evolution Strategies*. Natural Computing Series. Spinger, Berlin, Heidelberg, 2001.
- [8] BROCKHAUS: *Der Brockhaus - Enzyklopädie*. F.A. Brockhaus, 1995.
- [9] BRONSTEIN, ILJA N., KONSTANTIN A. SEMENDJAJEW, GERHARD MUSIOL und HEINER MÜHLIG: *Taschenbuch der Mathematik*. Verlag Harri Deutsch, Thun, 1993.
- [10] CHRISTEN, HANS RUDOLF und GERD MEYER: *Grundlagen der allgemeinen anorganischen Chemie*. Salle und Sauerländer, Frankfurt am Main, 1997.

- [11] COELLO COELLO, C. A., G. B. LAMONT und D. A. VAN VELDHUIZEN: *Evolutionary Algorithms for Solving Multi-Objective Problems*. Springer, 2. Auflage, 2007.
- [12] DAUBERT, T.E. und R.P. DANNER: *Data Compilation Tables of Properties of Pure Compounds*. American Institute of Chemical Engineers, 1985.
- [13] DEB, KALYANMOY: *Multi-Objective Optimization using Evolutionary Algorithms*. Wiley-Interscience Series in Systems and Optimization. John Wiley & Sons, Ltd., Baffins Lane, Chichester, West Sussex, England, 1. Auflage, 2001.
- [14] DEB, KALYANMOY, AMRIT PRATAP, SAMEER AGARWAL und T. MEYARIVAN: *A Fast and Elitist Multi-Objective Genetic Algorithm: NSGA-II*, 2000.
- [15] DICKHÖFER, THOMAS: *Diplomarbeit: Entwicklung und Vergleich von evolutionären Algorithmen zur Approximation äquivalenter Urbilder von Pareto-optimalen Zielvektoren*, 2007. TU Dortmund, Fakultät für Informatik.
- [16] EIBEN, GUSZ und JIM SMITH: *Introduction to Evolutionary Computing*. Springer, Heidelberg, 2003.
- [17] ESTER, MARTIN, HANS-PETER KRIEGEL, JÖRG SANDER und XIAOWEI XU: *A density-based algorithm for discovering clusters in large spatial databases with noise*. In: *Second International Conference on Knowledge Discovery and Data Mining*, Seiten 226–231. AAAI Press, 1996.
- [18] FLEISCHER, MARK: *The Measure of Pareto Optima. Applications to Multi-objective Metaheuristics*. In: *Evolutionary Multi-Criterion Optimization. Second International Conference, EMO 2003*, Seiten 519–533. Springer, 2003.
- [19] FOGEL, LAWRENCE J., ALVIN J. OWENS und MICHAEL J. WALSH: *Artificial Intelligence through Simulated Evolution*. John Wiley, New York, USA, 1966.
- [20] GE, RENPU: *A filled function method for finding a global minimizer of a function of several variables*. *Mathematical Programming*, 46(1-3):191–204, 1990.
- [21] GMEHLING, JÜRGEN und BÄRBEL KOLBE: *Thermodynamik*. Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 1988.
- [22] GNU PROJECT, FREE SOFTWARE FOUNDATION: *GNU General Public License, version 2*, 05.09.2009. <http://www.gnu.org/licenses/gpl-2.0.html>.
- [23] GÖPFERT, ALFRED: *Lexikon der Optimierung*. Akademie-Verlag, Berlin, 1986.
- [24] GROSS, JOACHIM und GABRIELE SADOWSKI: *Perturbed-Chain SAFT: An Equation of State Based on a Perturbation Theory for Chain Molecules*. *IEEE Transactions on Evolutionary Computation*, 9(2):159–195, 2001.

- [25] HANSEN, NIKOLAUS: *The CMA Evolutionary Strategy: A Tutorial*, 05.09.2009. <http://www.bionik.tu-berlin.de/user/niko/cmatutorial.pdf>.
- [26] HANSEN, NIKOLAUS und ANDREAS OSTERMEIER: *Completely Derandomized Self-Adaptation in Evolution Strategies*. Industrial & Engineering Chemistry Research, 40(4):1244–1260, 2001.
- [27] HASTIE, TREVOR, ROBERT TIBSHIRANI und JEROME FRIEDMAN: *The Elements of Statistical Learning*. Springer, New York, 2009.
- [28] HOLLAND, JOHN H.: *Adaptation in natural and artificial systems*. University of Michigan Press, 1975.
- [29] HRSG.: VEREIN DEUTSCHER INGENIEURE, VDI-GESELLSCHAFT VERFAHRENS-TECHNIK UND CHEMIEINGENIEURWESEN (GVC): *VDI-Wärmeatlas*. Springer, Berlin, 2006.
- [30] IGEL, CHRISTIAN, NIKOLAUS HANSEN und STEFAN ROTH: *Covariance Matrix Adaptation for Multi-objective Optimization*. Evol. Comput., 15(1):1–28, 2007.
- [31] LOHMEIER, DARIUS: *Diplomarbeit: Ein mehrkriterielles Evolutionsverfahren zur Bestimmung des Gleichgewichtes mehrphasiger Zweikomponentensysteme.*, 2009. TU Dortmund, Fakultät für Informatik.
- [32] PREUSS, MIKE, GÜNTER RUDOLPH und FEELLY TUMAKAKA: *Solving multimodal problems via multiobjective techniques with Application to phase equilibrium detection*. In: *IEEE Congress on Evolutionary Computation, 2007. CEC 2007.*, Seiten 2703–2710. IEEE, 2007.
- [33] RECHENBERG, INGO: *Evolutionsstrategie '94*, Band 1 der Reihe *Werkstatt Bionik und Evolutionstechnik*. Friedrich Frommann Verlag (Günther Holzboog KG), Stuttgart, 1994.
- [34] RECHENBERG, PETER, GUSTAV POMBERGER und ANDERE: *Informatik-Handbuch*. Carl Hanser Verlag, München, Wien, 2002.
- [35] RUDOLPH, GÜNTER: *Diplomarbeit: Globale Optimierung mit parallelen Evolutionsstrategien.*, 1990. TU Dortmund, Fakultät für Informatik.
- [36] SCHUMANN, HEIDRUN: *Visualisierung - Grundlagen und allgemeine Methoden*. Springer, Berlin, Heidelberg, 2000.
- [37] SCHWEFEL, HANS-PAUL: *Kybernetische Evolution als Strategie der experimentellen Forschung in der Strömungstechnik*, 1965.

- [38] SCHWEFEL, HANS-PAUL: *Experimentelle Optimierung einer Zweiphasendüse Teil I*. Technischer Bericht Bericht 35, Projekt MHD-Staustrahlrohr 11.034/68, AEG Forschungsinstitut, Berlin, 1968.
- [39] SCHWEFEL, HANS-PAUL und GÜNTER RUDOLPH: *Contemporary Evolution Strategies*. Seiten 893–907. Springer-Verlag, 1995.
- [40] SCHWERTFEGER, BENJAMIN: *Diplomarbeit: Bestimmung des Gleichgewichtszustands eines Zweiphasensystems mit mehrere Komponenten mit Hilfe eines mehrkriteriellen Ansatzes.*, 2008. TU Dortmund, Fakultät für Informatik.
- [41] THEUS, MARTIN: *Interactive Data Visualization using Mondrian*. Journal of Statistical Software, 7(11):1–9, 11 2002.
- [42] WEICKER, KARSTEN: *Evolutionäre Algorithmen*. Teubner, Wiesbaden, 2. Auflage, 2007.
- [43] WOLPERT, DAVID H. und WILLIAM G. MACREADY: *No free lunch theorems for optimization*. IEEE Transactions on evolutionary computation, 1(1):67–82, 1997.
- [44] ZITZLER, ECKART und LOTHAR THIELE: *Multiobjective Optimization Using Evolutionary Algorithms - A Comparative Case Study*. Seiten 292–301. Springer, 1998.

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst habe und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet sowie Zitate kenntlich gemacht habe.

Dortmund, den 1. Oktober 2009

Raphael Stür

