针铁矿法沉铁过程亚铁离子浓度预测

谢世文1 谢永芳1 阳春华1 蒋朝辉1 桂卫华1

摘 要 针对针铁矿法沉铁过程出口亚铁离子浓度离线化验获得,存在很大滞后性,难以实现沉铁过程实时控制的问题,研究 反应器出口亚铁离子浓度在线预测方法.本文在分析沉铁过程化学反应机理的基础上,考虑铜离子对反应过程的影响,结合连续搅拌反应器 (Continuous stirred tank reactor, CSTR) 特性,建立了针铁矿法沉铁过程的机理模型,并提出了基于信息交换 的双粒子群搜索算法 (Double particle swarm optimization, DPSO) 优化选择机理模型的参数,构建基于最小二乘支持向量 机 (Least squares support vector machine, LS-SVM) 的机理模型输出误差的补偿模型,采用并联补集成方式建立了亚铁离 子浓度的集成预测模型.工业现场数据验证了所建模型能有效地反映亚铁离子浓度的变化趋势,为针铁矿法沉铁过程的优化 控制奠定了基础.

关键词 机理模型, 信息交换, 双粒子群算法, 误差补偿模型, 针铁矿法沉铁

引用格式 谢世文,谢永芳,阳春华,蒋朝辉,桂卫华. 针铁矿法沉铁过程亚铁离子浓度预测. 自动化学报, 2014, **40**(5): 830-837

DOI 10.3724/SP.J.1004.2014.00830

A Ferrous Iron Concentration Prediction Model for the Process of Iron Precipitation by Goethite

XIE Shi-Wen¹ XIE Yong-Fang¹ YANG Chun-Hua¹ JIANG Zhao-Hui¹ GUI Wei-Hua¹

Abstract The reactor outlet ferrous iron concentration of iron precipitation process by goethite is obtained by off-line analysis with a long time delay, which leads to difficult real-time control for removing iron process. It is significant to research the reactor outlet ferrous iron concentration on-line prediction method for this problem. On the basis of analyzing the chemical reaction mechanism in the iron precipitation process, by integrating the influence of copper ions to the reaction process and the feature of continuous stirred tank reactor (CSTR), the mechanism model for the iron precipitation process is established in this paper. The double particle swarm optimization (DPSO) algorithm based on information exchange is proposed to determine the parameters in the mechanism model, and the error compensation model for the mechanism model is built with least squares support vector machine (LS-SVM). The ferrous iron concentration integrated predicting model is established by the mode of parallel connection with compensation. The application results demonstrate that the integrated prediction model can effectively reflect the variation tendency of ferrous iron concentration, which may give a foundation for the optimization control in the procedure of iron precipitation by goethite.

Key words Mechanism model, information exchange, double particle swarm optimization (DPSO), error compensation model, iron precipitation by goethite

Citation Xie Shi-Wen, Xie Yong-Fang, Yang Chun-Hua, Jiang Zhao-Hui, Gui Wei-Hua. A ferrous iron concentration prediction model for the process of iron precipitation by goethite. *Acta Automatica Sinica*, 2014, **40**(5): 830–837

本文责任编委 曾志刚

1. 中南大学信息科学与工程学院 长沙 410083

湿法炼锌是有色金属锌的主要生产方法,目前 冶炼企业大多采用锌精矿直接常压富氧浸出的湿法 冶炼工艺,由于浸出溶液中的铁离子会影响锌的浸 出率及后续锌电解工艺,因此除铁是湿法炼锌的一 项重要工序及核心技术.针铁矿法沉铁由于沉铁渣 好、结晶体大,且容易过滤,是目前湿法炼锌中除铁 的常用方法^[1-2].

针铁矿法沉铁是在硫酸锌溶液中通入氧气把 Fe²⁺ 氧化为 Fe³⁺, Fe³⁺ 水解形成针铁矿聚合物沉 淀的过程. 针铁矿的形成过程对溶液环境要求苛刻,

收稿日期 2013-04-03 录用日期 2013-05-24

Manuscript received April 3, 2013; accepted May 24, 2013 国家自然科学基金创新研究群体科学基金 (61321003), 国家自然科学 基金 (61273186), 国家科技支撑计划 (2012BAF03B05), 中央高校基 本科研业务费专项资金 (2011JQ009), 湖南省自然科学基金委员会与株 洲市政府自然科学联合基金 (13JJ8003) 资助

Supported by the Foundation for Innovative Research Groups of the National Natural Science Foundation of China (61321003), National Natural Science Foundation of China (61273186), National Key Technology Research and Development Program of China (2012BAF03B05), the Fundamental Research Funds for the Central Universities (2011JQ009), and Joint Funds of Hunan Provincial Natural Science Foundation and Zhuzhou Municipal Government of China (13JJ8003)

Recommended by Associate Editor ZENG Zhi-Gang

^{1.} School of Information Science and Engineering, Central South University, Changsha 410083

溶液中 Fe²⁺ 浓度、Fe³⁺ 浓度、pH 值和温度等条 件必须保持在一定范围之内, Fe²⁺ 氧化沉淀太慢或 过快会影响沉铁效率和沉铁渣质量, 使反应器出口 离子浓度不达标. 沉铁工艺复杂、流程长, 过程操作 量主要靠现场工作人员根据反应器出口离线化验的 Fe²⁺ 浓度和生产经验进行调控, 如果操控不合理, 则反应器中针铁矿形成的环境难以维持, 影响后续 工艺. 而反应器出口 Fe²⁺ 浓度只能离线化验获得, 存在很大滞后性, 增加了沉铁过程操作量和 Fe²⁺ 浓 度实时控制的难度. 因此, 建立沉铁过程反应器出口 亚铁离子浓度预测模型并进行在线预测, 可根据预 测值对操作量进行实时调控, 实现沉铁过程操作量 的自动控制, 同时满足生产工艺指标, 对沉铁过程的 优化指导具有重要意义.

针铁矿法沉铁流程一般由多个串联的沉铁反应 器构成,属于典型的连续搅拌反应器 (Continuous stirred tank reactor, CSTR). 目前, 国内外学者已 将基于 CSTR 的建模方法广泛应用于复杂工业过 程^[3-4]. 特别是针对湿法炼锌过程, Haakana 等^[5] 研究了锌直接浸出过程的新型反应器系统,建立了 基于该反应系统的数学模型. Markus 等^[6] 深入研 究 Fe³⁺ 转化为 Fe²⁺ 的固液反应过程, 建立了该反 应的动力学模型. 而针铁矿法沉铁过程由于返流液, 形成了关联反应器系统,同时反应器内进行着气液 固多相反应过程,各化学反应之间相互影响,增加了 沉铁过程建模的难度,因此国内外对针铁矿法沉铁 过程建模的研究较少. 熊富强等^[7] 分析了针铁矿法 沉铁过程的反应机理,建立了其动态模型.铜离子 作为沉铁过程 Fe²⁺ 氧化反应的催化剂, 能明显提高 Fe²⁺ 氧化速率, 但文献 [7] 的模型没有考虑溶液中 铜离子的影响;另外仅从数据建模角度建立的集成 预测模型^[8] 难以体现沉铁过程反应机理, 所建模型 亦不能有效地反映实际生产过程.

本文基于集成建模思想^[9],针对针铁矿法沉铁 过程,深入研究沉铁过程的物理化学反应机理,建立 描述沉铁过程反应器中各离子浓度变化的机理模型, 提出了基于信息交换的双粒子群搜索算法 (Double particle swarm optimization, DPSO) 优化选择模 型参数,并采用工业数据建立最小二乘支持向量机 (Least squares support vector machine, LS-SVM) 的误差补偿模型,将机理模型与误差补偿模型并联 补集成,实现了反应器出口亚铁离子浓度在线预测.

1 针铁矿法沉铁过程机理模型

1.1 针铁矿法沉铁工艺

针铁矿法沉铁工艺流程如图 1 所示, 沉铁工艺

采用 5 个沉铁反应器,反应器沿着溜槽呈高低状依 次分布,沉铁后液经浓密机进行固液分离,部分底液 作为晶种返回 1# 反应器.反应器内通入常压氧气 以氧化 Fe²⁺, Fe³⁺则以针铁矿形式逐步沉淀,为保 持沉铁溶液的酸碱平衡,需向前 4 个反应器添加中 和剂 (主要成分是焙砂).每个反应器出口亚铁离子 浓度必须保持在一定范围之内,沉铁后液中 Fe²⁺ 质 量浓度需小于 1g/L,才能满足工艺要求指标.



Fig. 1 The technical process of iron precipitation

沉铁过程反应器内发生的 3 个主要化学反应为 亚铁离子的氧化反应、三价铁离子的水解反应和氢 离子的中和反应.由于 5 个反应器内发生的化学反 应相同,其数学模型类似,因此针对 1# 沉铁反应器, 以反应器中径向体积微元为反应单元对各个反应进 行分析,如图 2 所示.随着物料的不断加入,反应单 元上升到反应器出口位置.过程中三个反应同时进 行,反应单元中各离子浓度不断变化,由于搅拌器的 径向搅拌,可认为同一位置的反应单元内各处的离 子浓度相同,即每个反应单元为连续搅拌反应器模 型.本文分析反应单元在上升过程中各化学反应的 机理,描述反应单元内各离子浓度的变化规律.





1.2 亚铁离子的氧化反应

亚铁离子的氧化反应是反应器内的 Fe²⁺ 在酸

性环境下被氧气氧化为 Fe³⁺, 其反应方程式为

$$2Fe^{2+} + 2H^{+} + 0.5O_2 = 2Fe^{3+} + H_2O \quad (1)$$

由化学动力学可知,无催化剂作用时其反应速率 *r*_{Fe²⁺} 为

$$r_{\rm Fe^{2+}} = k_0 C^{\alpha}_{\rm Fe^{2+}} C^{\beta}_{\rm H^+} C^{\gamma}_{\rm O_2} \tag{2}$$

式中, k_0 为与温度有关的反应速率常数,可辨识获 得; $C_{\text{Fe}^{2+}}$, C_{H^+} , C_{O_2} 分别为 Fe^{2+} , H^+ 和 O_2 的浓 度; α , β , γ 为反应级数, 取 $\alpha = 1.84$, $\beta = 1$, $\gamma = -0.25^{[10]}$.

氧气在溶液中的溶解度受温度、氧分压、溶液 中固液成分和氧气通入量等因素的影响. 沉铁过程 中的氧压和反应器内温度基本不变, 且溶液固液成 分变化不大, 因此氧气溶解度主要受氧气流量的影 响. 当氧气流量较小时, 溶液中氧含量与氧气流量成 正比; 当氧气流量增大到一定程度时, 受氧气溶解度 限制, 溶液中的氧含量达到饱和. 由此溶液中氧气含 量与氧气流量的关系可表示为

$$C_{\rm O_2} = \ln(\lambda \cdot g + 1) \tag{3}$$

式中, λ 为待辨识参数, C_{O_2} 为溶液中 O_2 的浓度, g 为 O_2 流量.

以 $C_{\text{Fe}^{2+},\text{in}}$ 和 $C_{\text{O}_2,\text{in}}$ 分别表示反应器入口的 Fe²⁺ 和 O₂ 的浓度, 若 t 时刻反应单元内 Fe²⁺ 浓度 为 $C_{\text{Fe}^{2+}}$,则由式 (1) 的质量守恒可得此时氧气的浓 度为

$$C_{\rm O_2} = C_{\rm O_2,in} - \frac{1}{4} (C_{\rm Fe^{2+},in} - C_{\rm Fe^{2+}}) \qquad (4)$$

氧化过程中 Cu²⁺ 能降低氧分子离解反应的活 化能,提高氧气氧化 Fe²⁺ 的速度. 当溶液中 Fe²⁺ 质 量浓度大于 2g/L 时,增加 Cu²⁺ 浓度能够提高氧 化速率,若继续增加,则催化作用达到饱和,氧化速 率不会有很大的提高;当溶液中 Fe²⁺ 质量浓度小于 2g/L 时, Cu²⁺ 浓度与氧化速率成正比. 设 $k_{Cu^{2+}}$ 为 Cu²⁺ 对氧化反应速率的影响度,其表达式可分 段表示为

$$k_{\rm Cu^{2+}} = \begin{cases} k_1 C_{\rm Cu^{2+}}, & \rho(C_{\rm Fe^{2+}}) \le 2 \,\mathrm{g/L} \\ \log(k_2 C_{\rm Cu^{2+}} + 1), & \rho(C_{\rm Fe^{2+}}) > 2 \,\mathrm{g/L} \end{cases}$$
(5)

式中, k_1 , k_2 为辨识参数, $C_{cu^{2+}}$ 为溶液中 Cu^{2+} 浓度.

由于 1# 沉铁反应器中 Fe²⁺ 浓度大于 2g/L, 因此氧化反应的反应速率为

$$r_{\rm Fe^{2+}} = k_0 \times (1 + \log(k_2 C_{\rm Cu^{2+}} + 1)) \times C_{\rm Fe^{2+}}^{\alpha} \times C_{\rm H^+}^{\beta} \times \left[C_{\rm O_2,in} - \frac{1}{4} (C_{\rm Fe^{2+},in} - C_{\rm Fe^{2+}}) \right]^{\gamma}$$
(6)

根据 Fe²⁺ 浓度的质量平衡, 有:

$$\frac{\mathrm{d}C_{\mathrm{Fe}^{2+}}}{\mathrm{d}t} = \frac{F}{V}(C_{\mathrm{Fe}^{2+},\mathrm{in}} - C_{\mathrm{Fe}^{2+}}) - r_{\mathrm{Fe}^{2+}} \quad (7)$$

式中, F 为沉铟后液流量, V 为反应器的有效体积.

1.3 三价铁离子的水解反应

三价铁离子的水解反应是 Fe³⁺ 水解形成针铁 矿,其化学反应简化式为

$$\operatorname{Fe}^{3+} + 2\operatorname{H}_2\operatorname{O} = \operatorname{FeOOH} + 3\operatorname{H}^+ \tag{8}$$

由化学反应动力学,其反应速率[7]为

$$r_{\rm Fe^{3+}} = k_3 C_{\rm Fe^{3+}} \tag{9}$$

式中, k_3 为与温度有关的反应速率常数, 可辨识获得; $C_{\text{Fe}^{3+}}$ 为反应器中 Fe³⁺ 浓度.

根据式 (1) 及物料平衡, 氧化生成的 Fe³⁺ 浓度 为 ($C_{\text{Fe}^{2+},\text{in}} - C_{\text{Fe}^{2+}}$), 则 Fe³⁺ 浓度质量平衡方程为

$$\frac{\mathrm{d}C_{\mathrm{Fe}^{3+}}}{\mathrm{d}t} = \frac{F}{V}(C_{\mathrm{Fe}^{3+},\mathrm{in}} - C_{\mathrm{Fe}^{3+}}) + \frac{F}{V}(C_{\mathrm{Fe}^{2+},\mathrm{in}} - C_{\mathrm{Fe}^{2+}}) - r_{\mathrm{Fe}^{3+}}$$
(10)

式中, $C_{\text{Fe}^{3+},\text{in}}$ 为反应器入口的 Fe³⁺ 浓度.

1.4 氢离子的中和反应

氢离子的中和反应是 H⁺ 与添加的焙砂 (主要成分为 ZnO) 发生中和反应, 化学反应式为

$$2H^{+} + ZnO = Zn^{2+} + H_2O$$
(11)

H⁺ 与固体 ZnO 在溶液中的反应是固液两相非 催化反应,该反应模型为颗粒不断缩小的收缩未反 应芯模型^[11].反应器内温度恒定,搅拌均匀,可认为 焙砂颗粒的大小一致且氢离子均匀吸附在焙砂颗粒 上,流体反应物的反应速率为

$$r'_{\rm H^+} = -4\pi R_C^2 k_G C_{\rm H^+} \tag{12}$$

式中, R_C 为焙砂颗粒的半径; k_G 为流体滞流膜的传 质系数, 与颗粒大小和流体流速有关, 可辨识获得; $C_{\rm H+}$ 为反应器中 $\rm H^+$ 的浓度.

反应过程中反应单元经过径向搅拌,使得新加入的焙砂与已反应了的焙砂混合均匀,因此可近似 认为反应单元中焙砂颗粒的整体半径不变.全部焙 砂颗粒一起反应时,设培砂参加反应的效率为 k_4 ,则 消耗 H⁺ 的速率为

$$r_{\rm H^+} = \frac{\frac{m}{\rho}}{\frac{4}{3}\pi R_C^3} r'_{\rm H^+} = -\frac{3k_G}{\rho R_C} k_4 m C_{\rm H^+}$$
(13)

式中, ρ 为焙砂的密度; m 为反应器添加的焙砂量; 设 $\eta = \frac{3k_Gk_4}{\rho R_C}$, 可通过现场数据辨识获得.

根据溶液中 H+ 浓度的质量平衡, 有:

$$\frac{\mathrm{d}C_{\mathrm{H}^{+}}}{\mathrm{d}t} = \frac{F}{V}(C_{\mathrm{H}^{+},\mathrm{in}} - C_{\mathrm{H}^{+}}) + \frac{F}{V}[3(C_{\mathrm{Fe}^{3+},\mathrm{in}} - C_{\mathrm{Fe}^{3+}}) + 2(C_{\mathrm{Fe}^{2+},\mathrm{in}} - C_{\mathrm{Fe}^{2+}})] + r_{\mathrm{H}^{+}}$$
(14)

式中, C_{H+} 为反应器入口的 H⁺ 浓度.

用 x_1 , x_2 , x_3 分别表示反应器中 Fe²⁺, Fe³⁺ 和 H⁺ 离子的浓度, x_{1in} , x_{2in} , x_{3in} 分别表示反应 器入口的 Fe²⁺, Fe³⁺ 和 H⁺ 离子的浓度. 联立式 (7)、(10) 和 (14), 以 1# 沉铁反应器为对象, 建立 沉铁过程机理模型:

$$\begin{cases} \dot{\boldsymbol{x}} = A\boldsymbol{x} + B\boldsymbol{x}_{\rm in} - \boldsymbol{\phi}(\boldsymbol{x}_{\rm in}, \boldsymbol{x}) \\ \hat{y} = \boldsymbol{C}\boldsymbol{x} \end{cases}$$
(15)

式中,

$$\begin{split} \boldsymbol{x} &= [x_1, x_2, x_3]^{\mathrm{T}}, \ \boldsymbol{x}_{\mathrm{in}} = [x_{1\mathrm{in}}, x_{2\mathrm{in}}, x_{3\mathrm{in}}]^{\mathrm{T}} \\ A &= \begin{bmatrix} -\frac{F}{V} & 0 & 0 \\ -\frac{F}{V} & -\frac{F}{V} & 0 \\ -\frac{2F}{V} & -\frac{3F}{V} & -\frac{F}{V} \end{bmatrix} \\ B &= \begin{bmatrix} \frac{F}{V} & 0 & 0 \\ \frac{F}{V} & \frac{F}{V} & 0 \\ \frac{2F}{V} & \frac{3F}{V} & \frac{F}{V} \end{bmatrix} \\ \boldsymbol{C} &= [1, 0, 0], \ \boldsymbol{\phi} = [\phi_1, \phi_2, \phi_3]^{\mathrm{T}} \\ \phi_1 &= k_0 (1 + \log(k_2 C_{\mathrm{Cu}^{2+}} + 1)) x_1^{\alpha} x_3^{\beta} \times \\ &\quad [\ln(\lambda \cdot g + 1) - \frac{1}{4} (x_{1\mathrm{in}} - x_1)]^{\gamma} \\ \phi_2 &= k_3 x_2, \ \phi_3 = nm x_3 \end{split}$$

 \hat{y} 为反应器出口 Fe²⁺ 浓度; k_0 , k_2 , k_3 , λ , η 分别为 模型中待辨识参数, 构成待辨识向量 $\boldsymbol{\theta} = [k_0, k_2, k_3, \lambda, \eta]$.

2 基于信息交换的 DPSO 机理模型参数辨 识

标准粒子群优化 (Particle swarm optimization, PSO) 算法, 粒子群在 n 维空间搜索的过程 中以适应度函数来衡量各微粒与最优位置的差距, 并根据个体极值和群体极值来更新移动速度和位置, 使微粒向群体中最好的粒子移动, 从而得到问题的 最优解^[12]. 粒子速度和位置更新如式 (16) 所描述:

$$\begin{cases} v_i(k+1) = wv_i(k) + c_1r_1(pbest_i - x_i(k)) + \\ c_2r_2(gbest - x_i(k)) \\ x_i(k+1) = x_i(k) + v_i(k+1) \end{cases}$$
(16)

式中, $v_i(k)$ 为 k 次迭代时第 i 个粒子的速度; $x_i(k)$ 为 k 次迭代时第 i 个粒子的位置; pbest 为粒子的 个体极值; gbest 为粒子的全局极值; w 为惯性权重; c_1, c_2 为加速系数; r_1, r_2 是区间 [0,1] 内均匀分布 的随机数.

沉铁过程机理模型参数辨识的适应度函数为

$$f(\boldsymbol{\theta}) = \sum_{i=1}^{N} (y_i - \hat{y}_i)^2$$
(17)

式中, y_i 为第 i 个测试样本的实测值; \hat{y}_i 为第 i 个测试样本的机理模型预测值; N 为样本总数.

机理模型中待辨识参数的范围未知,因此 PSO 算法要能够有效地避免粒子陷入局部最优.为此提 出基于信息交换的 DPSO 优化算法,随机初始化 θ , 用5维微粒的位置 $X_i(x_{i1}, x_{i2}, x_{i3}, x_{i4}, x_{i5})$ 表示5 个待辨识参数 $[k_0, k_2, k_3, \lambda, \eta]$ 的取值, 根据适应度 函数值按式 (16) 迭代进化, 优化选择 θ 使得 $f(\theta)$ 最小. 算法的基本思想为: 把整个微粒群分为两组, 第一组微粒通过调整算法惯性权重和最大速度上限 参数增强微粒群的全局搜索能力,避免陷入局部极 值; 第二组微粒的惯性权重以 S 型函数递减, 在搜索 后期对极值进行精确搜索,提高全局最优解的精度. 搜索过程中两组粒子相互交换信息,若第一组微粒 最优解优于第二组微粒最优解,则两组微粒交换搜 索方式, 第二组微粒飞到第一组微粒的最优解位置 进行精确搜索,而第一组微粒则在第二组微粒最优 解位置及其附近搜索,以免陷入局部最优解,两组微 粒以此条件不断交换搜索方式,直到迭代完成或寻 到全局最优解.

两组粒子信息和搜索方式的交换使算法可以综 合两组微粒搜索方式的优越性,既能避免过早地收 敛和搜索到全局最优解,又能提高搜索精度.因此信 息交换的 DPSO 能有效地辨识范围未知的模型参数,在寻找全局最优解的同时提高最优解的精度.

在 PSO 算法中,惯性权重能平衡全局与局部 搜索^[13],较大的惯性权重可以提高算法的全局搜索, 较小的权值利于微粒的局部搜索.基于信息交换的 DPSO 算法第一组和第二组粒子的惯性权重调整规 律如式 (18) 和 (19) 所描述:

$$w_{1} = w_{\min} + (w_{\max} - w_{\min}) \times \frac{\left[1 + \cos\left(\frac{6\pi(k-1)}{Maxgen - 1}\right)\right]}{2}$$
(18)

$$w_{2} = w_{\min} + (w_{\max} - w_{\min}) \times \left[1 - \log \operatorname{sig} \left(\frac{12k}{Maxgen} - 6\right)\right]$$
(19)

式中, w_{min}, w_{max} 分别为惯性权重的最大、最小值; k 为当前的迭代次数; Maxgen 为迭代次数.

为使粒子的速度不至过大而错过最优解, 通常 设定速度的上下限 [$-V_{max}, V_{max}$].最大速度 V_{max} 决定了粒子搜索的位置与最好位置之间的精度^[14], 第一组粒子的最大速度上限为 $V_{1max} = 1$,而第二组 粒子的 V_{2max} 随迭代次数的线性变化如式 (20) 所 示.

$$V_{2\max} = \max(V_{\max}) + \left[\min(V_{\max}) - \max(V_{\max})\right] \times \frac{k}{Maxaen}$$
(20)

式中, $\max(V_{\max})$, $\min(V_{\max})$ 分别为 V_{\max} 的最大 值和最小值.

采用基于信息交换的 DPSO 算法辨识参数的步骤为:

步骤 1. 初始化两组微粒群,包括种群数目、微 粒的初始速度、位置和控制参数;

步骤 2. 按式 (17) 计算每个粒子适应度值,并 求解个体极值和群体极值;

步骤 3. 根据式 (18)~(20) 计算两组粒子的惯 性权重和最大速度上下限,由式 (16) 更新两组微粒 的位置和速度;

步骤 4. 重新计算粒子的适应度值,更新两组微 粒的个体极值和群体极值;

步骤 5. 若第一组微粒的全局历史最优位置优 于第二组微粒的,则两组微粒的惯性权重和最大速 度上限变化规律互换,继续搜索;

步骤 6. 判断是否满足终止条件,如果满足则停止搜索,输出寻优结果;否则转到步骤 3.

为了测试信息交换的 DPSO 算法性能,利用 3 个典型的测试函数进行测试,并与线性递减权重 PSO (Linearly decreasing weight particle swarm optimization, LDWPSO) 和无信息交换 DPSO 算 法比较.3 个测试函数分别为

$$\max f_1 = \frac{\sin\sqrt{x^2 + y^2}}{\sqrt{x^2 + y^2}} + e^{\frac{\cos 2\pi x + \cos 2\pi y}{2}} - 2.71289,$$
$$|x, y| \le 10$$

$$\min f_2 = \sum_{i=1}^{10} \left[x_i^2 - 10\cos(2\pi x_i) + 10 \right],$$
$$|x_i| \le 5.12$$

$$\min f_3 = \sum_{i=1} \left[100(x_{i+1} - x_i^2)^2 + (x_i - 1)^2 \right],$$
$$|x_i| \le 10$$
(21)

LDWPSO 算法的惯性权重在 [0.9, 0.4] 之间随 迭代次数线性递减, 无信息交换 DPSO 算法两组微 粒的搜索方式与信息交换 DPSO 的两组粒子搜索 方式相同, 只是两组粒子间没有信息与搜索方式的 交换, 搜索结果取两组微粒中的最优解. 3 种算法的 种群大小均为 50, c₁, c₂ 均为 1.49445, 最大速度为 测试函数变量的取值范围, 迭代进化 1000 次, 进行 100 次优化计算. 仿真结果如表 1 所示, 取算法陷入 局部最优解次数 N (寻优结果与函数全局最优值的 绝对误差大于 10⁻⁴ 视为陷入局部最优解) 与平均最 优函数值 V 为算法性能的评估指标.

表1 三种算法仿真结果比较

Table 1 The comparative results of three algorithms

函数	LDWPSO		无信息交换 DPSO		信息交换 DPSO	
	N	V	N	V	N	V
f_1	6	0.9959	5	0.9975	0	1.0054
f_2	54	11.26	48	10.89	23	6.19
f_3	96	24.73	89	21.57	34	11.35

由表 1 可知,本文提出的信息交换 DPSO 算法 能有效地避免算法陷入局部最优,提高了寻优结果 的可靠性和精确性.

3 最小二乘支持向量机的误差补偿模型

沉铁过程反应复杂,在机理建模过程中有很多 假设条件,使得机理模型预测的反应器出口亚铁离 子浓度与实测值之间存在误差.沉铁过程中末槽的 部分压滤液作为返流晶种循环至首槽继续参加反应, 5 个沉铁反应器形成相互关联的系统,因此返流量 对反应器出口的亚铁离子浓度具有一定的影响.而 返流量中所含的离子浓度没有离线化验,各离子浓 度未知,不能作为输入量加入到针铁矿法沉铁过程 机理模型中,该模型无法体现这一影响因素.

基于数据驱动的建模方法能够体现返流量的影响,将返流量与入口的流量、亚铁离子浓度、三价铁 离子浓度、氢离子浓度、铜离子浓度、氧气通入量和 焙砂添加量作为最小二乘支持向量机的输入量,采 用参数辨识后机理模型 Fe²⁺ 预测值与 Fe²⁺ 实测值 的误差构建训练样本,建立基于最小二乘支持向量 机的误差预测模型:

$$e = f_{\text{LSSVM}}(\boldsymbol{X}_n) \tag{22}$$

式中, X_n 为最小二乘支持向量机的输入量, 包含 反应器入口的流量、 Fe^{2+} 浓度、 Fe^{3+} 浓度、 H^+ 浓 度、 Cu^{2+} 浓度、 O_2 流量、焙砂的量和返流量; e 为 预测误差.

将沉铁过程机理模型与最小二乘支持向量机误差预测模型采用并联补集成方式进行集成^[9],建立基于机理建模和数据驱动建模的反应器出口亚铁离子浓度集成预测模型,如图3所示.图3中,**X**_m为沉铁过程状态空间机理模型输入量,包含反应器入口的流量、Fe²⁺浓度、Fe³⁺浓度、H⁺浓度、Cu²⁺浓度、O₂流量和焙砂的量.



concentration

4 工业验证

沉铁过程是一个复杂、强非线性过程,且生产过 程中还有很多干扰因素,因此实际生产过程中很难 精确预测反应器出口的亚铁离子浓度,但是对亚铁 离子浓度变化的趋势预测却至关重要.如能精确地 预测其变化趋势,则可对沉铁过程的优化操作起指 导作用,适当地调整沉铁过程中的操作量即可稳定 生产流程,使出口离子的浓度达标.因此,提出变化 趋势 (*Trend*) 这一性能指标来评价预测模型跟踪实 测值的优劣,其计算如式 (23) 所示.

$$Trend_i = y_{i+1} - y_i \tag{23}$$

式中, *Trend_i* 为第 *i* 个样本的变化趋势; y_i 为第 *i* 次采样的 Fe²⁺ 浓度值. *Trend* 的正负号表示 Fe²⁺ 浓度将增大或减小, 其绝对值表示增大 (或减小) 的 幅度, 若预测 Fe²⁺ 浓度的 *Trend* 与实测 Fe²⁺ 浓度 的 *Trend* 符号相同, 则表示它们的变化趋势相同; 否则反之.

以某锌冶炼厂针铁矿法沉铁过程为研究对象, 取 2011 年 4 月 1*#* 沉铁反应器的工业生产数据,其 中各离子浓度为每 2h 离线化验一次,流量、返流 量、氧气量和焙砂量可以实时在线检测,其样本点的 时间间隔为 10 min,采用 3 σ 准则剔除异常样本和进 行样本时序匹配后共 180 组数据,随机选取 30 组进 行模型参数的优化选择计算,其余数据作为最小二 乘支持向量机误差补偿模型的训练样本,并对 2012 年 9 月 50 组现场工况进行验证.采用基于信息交 换的 DPSO 算法优化选择机理模型参数,两组粒子 种群规模均为 30, c_1 , c_2 均为 1.49445, $w_{max} = 1.0$, $w_{min} = 0.1$, max(V_{max}) = 1, min(V_{max}) = 0.1. 经 过 200 次寻优迭代后,获得最优模型参数为

$\boldsymbol{\theta} = [657.40, 64\,837.82, 3\,478.58, 0.014697, 62.26]$

运用机理模型预测值与实测值的误差构建训练 样本,建立最小二乘支持向量机误差预测模型,预测 结果如图 4 所示.其误差预测模型的平均相对误差 (Mean relative error, MRE)为0.0622,均方根误差 (Root mean square error, RMSE)为0.3205g/L, 模型能有效地预测后续样本的误差.



将机理模型与最小二乘支持向量机误差预测模型并联补集成,得到反应器出口亚铁离子浓度的集成预测模型,其预测结果如图5所示.

对本文基于机理建模和数据驱动建模的亚铁离 子集成预测模型的预测结果进行统计和分析,对比 文献 [7] 动态模型和文献 [8] 集成预测模型的预测 结果,其对比结果如表 2 所示.采用平均相对误差、 相对均方根误差 (Relative root mean square error, RRMSE)、预测 Fe²⁺ 浓度的 *Trend* 与实测 Fe²⁺ 浓 度的 *Trend* 符号相同的样本比例 (Same-trend) 和 相对误差在 8% 之内的样本比例 (Error-8%) 作为 预测模型的评价指标.



图 5 业状离子状度顶侧 Fig. 5 The prediction of ferrous iron concentration

相对于文献 [7] 的动态模型,本文集成预测模型 预测结果的 MRE、RRMSE 和 Same-trend 分别提 高了 0.0367、0.0491 和 17%,文献 [7] 的动态模型 简化了氧化反应的反应级数,未考虑铜离子对氧化 速率的影响,因此该模型的预测精度有所降低,很难 有效地反映 Fe²⁺ 浓度的变化趋势.相对于文献 [8] 的集成预测模型,本文预测模型预测结果的 MRE 和 RRMSE 分别提高了 0.0105、0.0254,由于文献 [8] 的集成预测模型仅从数据的角度建模,未考虑沉 铁过程复杂的反应机理,因此预测精度低于基于机 理建模和数据建模的集成预测模型.

表 2 亚铁离子预测结果对比

 Table 2
 Comparison of ferrous iron concentration

 prediction

评价指标	MRE	RRMSE	Same-trend	Error-8 $\%$
文献 [8] 集成模型	0.0907	0.1184	_	_
文献 [7] 动态模型	0.1169	0.1421	75%	_
本文集成预测模型	0.0802	0.0930	92%	94%

注: - 表示无法统计.

由表 2 可知, 基于机理建模和数据驱动建模的

集成预测模型的精度和跟踪趋势都得到提高,说明本文建立的集成预测模型能更好地跟踪 Fe²⁺ 浓度的变化趋势,为针铁矿法沉铁过程的优化控制创造 了条件.

5 结论

本文通过分析沉铁反应过程中的化学反应机理, 建立了反应器出口的亚铁离子浓度机理模型.提出 基于信息交换的 DPSO 算法辨识模型中的参数,建 立了基于最小二乘支持向量机的误差补偿模型,并 采用并联补集成方式将机理模型与误差补偿模型进 行集成,建立反应器出口亚铁离子浓度的集成预测 模型.工业验证结果表明集成预测模型预测精度较 高,能很好的跟踪亚铁离子浓度的变化趋势,为针铁 矿法沉铁过程的优化控制奠定了基础.

References

- 1 Chang Y F, Zhai X J, Li B C, Fu Y. Removal of iron from acidic leach liquor of lateritic nickel ore by goethite precipitate. *Hydrometallurgy*, 2010, **101**(1–2): 84–87
- 2 Loan M, Newman O M G, Cooper R M G, Farrow J B, Parkinson G M. Defining the paragoethite process for iron removal in zinc hydrometallurgy. *Hydrometallurgy*, 2006, 81(2): 104–129
- Kumar N, Khanduja N. Mathematical modelling and simulation of CSTR using MIT rule. In: Proceedings of the 2012 IEEE 5th India International Conference on Power Electronics. Delhi, India: IEEE, 2012. 1–5
- 4 Gui Wei-Hua, Yang Chun-Hua, Chen Xiao-Fang, Wang Ya-Lin. Modeling and optimization problems and challenges arising in nonferrous metallurgical process. Acta Automatica Sinica, 2013, **39**(3): 197-207 (桂卫华, 阳春华, 陈晓方, 王雅琳. 有色冶金过程建模与优化的若干 问题及挑战. 自动化学报, 2013, **39**(3): 197-207)
- 5 Haakana T, Lahtinen A, Takala H, Ruonala M, Turunen I. Development and modelling of a novel reactor for direct leaching of zinc sulphide concentrates. *Chemical Engineering Science*, 2007, **62**(18–20): 5648–5654
- 6 Markus H, Fugleberg S, Valtakari D, Salmi T, Murzin D Y, Lahtinen M. Reduction of ferric to ferrous with sphalerite concentrate, kinetic modelling. *Hydrometallurgy*, 2004, **73**(3-4): 269-282
- 7 Xiong Fu-Qiang, Gui Wei-Hua, Yang Chun-Hua, Li Yong-Gang. Dynamic modeling for process of iron precipitation based on goethite method. Journal of Central South University (Science and Technology), 2012, 43(2): 541-547 (熊富强, 桂卫华, 阳春华, 李勇刚. 基于针铁矿法的沉铁过程动态建模. 中南大学学报 (自然科学版), 2012, 43(2): 541-547)
- 8 Xiong Fu-Qiang, Gui Wei-Hua, Yang Chun-Hua. Integrated prediction model of iron concentration in goethite method to remove iron process. *Control and Decision*, 2012, 27(3):

229-334.342

(熊富强, 桂卫华, 阳春华. 针铁矿法沉铁过程铁离子浓度集成预测 模型. 控制与决策, 2012, **27**(3): 229-334, 342)

9 Gui Wei-Hua, Yang Chun-Hua. Intelligent Modeling, Control and Optimization in the Complex Non-ferrous Metallurgy Production Process. Beijing: Science Press, 2010. 860 -866

(桂卫华,阳春华.复杂有色冶金生产过程智能建模、控制与优化.北 京:科学出版社,2010.860-866)

- 10 Chen Nai-Sheng, Zhao Jing-Gui, Zhang Bin-Qiu. Research on oxidation speed of ferrous ion with the process of iron removal by the method of goethite. *Journal of Natural Science of Heilongjiang University*, 1984, (3): 76-80 (陈耐生, 赵经贵, 张滨秋. 对针铁矿法除铁过程中亚铁离子氧化速 度的研究. 黑龙江大学自然科学学报, 1984, (3): 76-80)
- 11 Homma S, Ogata S, Koga J, Matsumoto S. Gas-solid reaction model for a shrinking spherical particle with unreacted shrinking core. *Chemical Engineering Science*, 2005, **60**(18): 4971–4980
- 12 Liu Jian-Hua, Liu Guo-Mai, Yang Rong-Hua, Hu Wen-Yu. Analysis of interactivity and randomness in particle swarm optimization. Acta Automatica Sinica, 2012, **38**(9): 1471– 1484 (刘建华, 刘国买, 杨荣华, 胡文瑜. 粒子群算法的交互性与随机性分 析. 自动化学报, 2012, **38**(9): 1471–1484)
- 13 Alfi A. PSO with adaptive mutation and inertia weight and its application in parameter estimation of dynamic systems. Acta Automatica Sinica, 2011, 37(5): 541-549
- 14 Xu F S, Chen W. Stochastic portfolio selection based on velocity limited particle swarm optimization. In: Proceedings of the 6th World Congress on Intelligent Control and Automation. Dalian, China: IEEE, 2006. 3599–3603



谢世文 中南大学信息科学与工程学院 博士研究生. 主要研究方向为工业过程 建模与优化控制,智能控制系统. E-mail: mathking@csu.edu.cn

(XIE Shi-Wen Ph.D. candidate at the School of Information Science and Engineering, Central South University.

His research interest covers modeling and optimal control of complex industrial process, intelligent control system.)



谢永芳 博士, 中南大学教授. 主要研究 方向为复杂工业过程建模与控制、分散 鲁棒控制.

E-mail: yfxie@mail.csu.edu.cn

(XIE Yong-Fang Ph.D., professor at Central South University. His re-

search interest covers modeling and optimal control of complex industrial process, distributed robust control.)



阳春华 博士, 中南大学教授. 主要研究 方向为复杂工业过程建模与优化控制, 智能自动化控制系统.

E-mail: ychh@mail.csu.edu.cn

(YANG Chun-Hua Ph.D., professor at Central South University. Her research interest covers modeling and

optimal control of complex industrial process, intelligent automation control system.)



蒋朝辉博士,中南大学副教授.主要研究方向为复杂工业过程建模与优化控制, 广义大系统控制理论与应用.本文通信 作者. E-mail: jzh0903@mail.csu.edu.cn (**JIANG Zhao-Hui** Ph.D., associate professor at Central South University. His research interest covers model-

ing and optimal control of complex industrial process, and singular large-scale systems control theory and application. Corresponding author of this paper.)



桂卫华 中国工程院院士,中南大学教授.主要研究方向为复杂工业过程建模与优化控制,工业大系统控制理论与应用. E-mail: gwh@mail.csu.edu.cn

(**GUI Wei-Hua** Academician of Chinese Academy of Engineering, professor at Central South University. His re-

search interest covers modeling and optimal control of complex industrial process, and industrial large system control theory and application.)