湿法炼锌沉铁过程氧化速率优化控制

谢世文1 谢永芳1 李勇刚1 阳春华1 桂卫华1

摘 要 湿法炼锌沉铁过程针铁矿沉淀形成的条件要求苛刻, 亚铁离子的氧化速率必须控制在合理的范围内才能保证溶液中 的铁离子以针铁矿形式除去.本文在沉铁过程动态模型的基础上,根据针铁矿沉淀形成的条件和结合流程工艺要求,优化设定 每个反应器出口的亚铁离子浓度,进而建立针铁矿法沉铁过程氧化速率优化控制模型.采用控制参数化方法将最优控制求解 问题转化为非线性规划,通过状态转移优化算法求取最优的氧气和氧化锌控制率,以合理控制沉铁过程亚铁离子的氧化速率. 仿真结果表明,优化控制模型计算所得的控制量不仅可以保证反应过程的氧化速率符合生成针铁矿沉淀的条件,而且可以稳 定生产流程.

关键词 优化设定,优化控制,控制参数化,状态转移优化算法,针铁矿法沉铁

引用格式 谢世文, 谢永芳, 李勇刚, 阳春华, 桂卫华. 湿法炼锌沉铁过程氧化速率优化控制. 自动化学报, 2015, **41**(12): 2036-2046

DOI 10.16383/j.aas.2015.c150192

Optimal Control of Oxidizing Rate for Iron Precipitation Process in Zinc Hydrometallurgy

 ${\rm XIE}~{\rm Shi-Wen}^1 ~~ {\rm XIE}~{\rm Yong-Fang}^1 ~~ {\rm LI}~{\rm Yong-Gang}^1 ~~ {\rm YANG}~{\rm Chun-Hua}^1 ~~ {\rm GUI}~{\rm Wei-Hua}^1$

Abstract In the iron removal process in zinc hydrometallurgy, the reaction conditions to form goethite precipitate are difficult to achieve, in which the oxidizing rate of ferrous ion has to be strictly controlled to remove the iron ion from leach solution by goethite. On the basis of dynamic model for iron removal process and according to the forming conditions of goethite precipitate and procedure requirements, the optimal setting model of reactor outlet ferrous ion concentration is investigated in this paper. An optimal control model of oxidizing rate for iron precipitation process is established. The optimal control problem is transformed to a nonlinear mathematical programming problem by control parameterization method. The mathematical programming problem is then solved utilizing state transition optimization algorithm to obtain the optimal control of oxygen and zinc oxide to make the oxidizing rate in the best conditions of forming goethite precipitate. Numerical simulations validate that the optimal control of oxidizing rate can not only satisfy the forming conditions of goethite precipitate but also stabilize the production process.

Key words Optimal setting, optimal control, control parameterization, state transition optimization algorithm, iron removal process by goethite

Citation Xie Shi-Wen, Xie Yong-Fang, Li Yong-Gang, Yang Chun-Hua, Gui Wei-Hua. Optimal control of oxidizing rate for iron precipitation process in zinc hydrometallurgy. *Acta Automatica Sinica*, 2015, **41**(12): 2036–2046

铁在很多化工过程中作为杂质离子必须除去[1],

在湿法炼锌过程,锌矿石中共生的铁元素会随着球 磨浆化工序进入浸出液中,进而影响锌溶液的电解 和锌成品的质量,因此除铁是湿法炼锌过程一道重 要和关键的工艺.

目前, 在湿法炼锌过程中, 有效除铁的方法有黄 钾铁矾法、赤铁矿法和针铁矿法^[1-2]. 针铁矿法沉铁 不需要添加其他金属阳离子, 沉淀结晶体大, 沉铁渣 容易过滤, 且针铁矿沉淀经过进一步处理具有很高 的工业应用价值^[2]. 针铁矿法沉铁过程是将溶液中 二价铁离子氧化为三价铁离子, 三价铁离子水解形 成针铁矿的多相多反应的化学过程. 然而, 针铁矿法 沉铁工艺的操作条件要求苛刻, 过程控制量 (氧气和 氧化锌) 难以控制在满足生产要求的范围内. 在沉铁 操作过程中, 为促进 针铁矿 沉淀的 形成, 溶液 中的

收稿日期 2015-04-21 录用日期 2015-08-18

Manuscript received April 21, 2015; accepted August 18, 2015 国家自然科学基金创新研究群体科学基金 (61321003), 国家高技 术研究发展计划 (863 计划) (2014AA041803), 国家自然科学基金 (61273186, 61503416), 中南大学创新驱动计划项目 (2015cx007), 中 南大学中央高校基本科研业务费 (2015zzts049) 资助

Supported by the Foundation for Innovative Research Groups of the National Natural Science Foundation of China (61321003), National High Technology Research and Development Program of China (863 Program) (2014AA041803), National Natural Science Foundation of China (61273186, 61503416), Innovationdriven Plan in Central South University (2015cx007), the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Central South University (2015zzts049)

本文责任编委 苏宏业

Recommended by Associate Editor SU Hong-Ye

^{1.} 中南大学信息科学与工程学院,长沙 410083

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

pH 和温度等条件必须保持在一定范围之内^[1,3].其 中最为关键的是溶液中三价铁离子的质量浓度必须 始终保持在低于 2g/L 之内^[1] 以及合理控制亚铁离 子的氧化速率,使三价铁离子水解生成的是针铁矿 而不是其他产物.如果溶液中的亚铁离子被氧气氧 化的速率过大,则容易形成 Fe(OH)₃ 胶体沉淀,而 Fe(OH)₃ 难以过滤,会影响除铁效果;如果亚铁离子 氧化过慢,则不能达到流程的生产要求,流程出口的 亚铁离子浓度会超出工艺指标要求.因此,针铁矿法 沉铁过程的亚铁离子氧化速率的优化控制不仅可以 有效地浸出溶液中的铁离子,而且对保证针铁矿沉 淀的质量有着至关重要的作用.

在工业生产过程中,为达到生产工艺指标要求 和保证产品的质量,一般采用优化控制思想,优化调 整过程控制量, 使生产条件达到最优的状态, 以满足 生产要求. 对于工业生产过程的优化控制国内外研 究学者进行了大量研究^[4-10]. Zhou 等^[10] 建立了磨 矿过程智能监控系统,包括控制回路设定点优化模 型、基于人工神经网络的软测量模型、基于模糊逻 辑的动态调节器和超负荷诊断专家系统,实现了生 产过程的优化运行. Li 等^[11] 研究了湿法炼锌净化 过程的优化控制方法,构建了具有时滞和不等式约 束的优化控制模型,采用控制参数化方法求解最优 控制率. Yang 等^[12] 针对铝冶炼混合过程提出了基 于分层推理策略的优化设定控制方法,提高了生产 过程的合格率以及降低了混合过程能量消耗. Sun 等[13] 采用智能优化控制方法来实现湿法炼锌除钴 过程的优化运行,其控制策略包含5个部分:过程 监控、锌粉利用率预估、除钴率最优设定、ORP 设 定和基于案例推理的控制器. Chai 等^[14] 为了优化 控制竖炉焙烧过程的工艺指标,采用混合智能控制 方法,包括预设定模型、前馈补偿器、反馈补偿器、 工艺指标预测模型、故障工况诊断和容错控制器. Loxton 等^[15] 在求解最优控制时, 将控制信号的变 化作为惩罚因子加入到目标函数中,并开发了此类 最优问题的求解算法,将其成功应用在渔业捕捞控 制、列车控制和化学工程控制中.

本文在前期对湿法炼锌针铁矿法沉铁过程动态 模型的研究基础上^[16],根据工艺条件约束和沉铁过 程统计数据的分析,首先建立反应器出口亚铁离子 浓度优化设定模型,得到每个反应器亚铁离子氧化 量的最优值. 然后,根据优化设定值,建立沉铁过程 氧化速率优化控制模型,使反应器内的氧化速率达 到符合生成针铁矿的要求,以保证针铁矿沉淀的质 量和满足工艺指标要求.

1 湿法炼锌针铁矿法沉铁流程

湿法炼锌过程中,利用针铁矿法除铁的途径有:

还原氧化法 (V.M 法) 和水解法 (E.Z 法)^[17]. 某湿 法炼锌企业冶炼锌金属的流程如图 1 所示, 沉铁属 于直接浸出流程工艺, 其采用 V.M 法实现针铁矿法 沉铁. 浸出液经过预还原工序, 将溶液中大部分的三 价铁离子还原为亚铁离子, 使三价铁离子的质量浓 度低于 2 g/L, 满足生成针铁矿的条件. 预还原工序 后, 浸出液流入针铁矿法除铁流程, 其入口溶液的主 要离子成分如表 1 所示. 由表 1 可知, 入口溶液中 大部分的铁离子以二价铁离子形式存在, 溶液中三 价铁离子的浓度符合针铁矿的形成条件. 且溶液中 含有铜离子, 可以降低亚铁离子和氧化反应的活化 能, 在亚铁离子氧化过程中起催化剂作用.



图 1 湿法炼锌生产流程

Fig. 1 Production flowchart of zinc hydrometallurgy

表1 浸出液中的离子成分含量 Table 1 Contents of leaching solution

离子	Zn^{2+}	Fe^{2+}	Fe ³⁺	$\rm H^+(pH)$	Cu^{2+}	$\mathrm{SO}_4{}^{2-}$
含量 (g/L)	$120 \sim 160$	$9{\sim}16$	$1{\sim}2$	$2.0\sim 2.5$	$0.9\sim 3$	_

该湿法炼锌企业针铁矿法除铁流程工艺如图 2 所示,包含5个连续搅拌反应器,溶液中的二价铁离 子在酸性环境下被通入的常压氧气逐渐氧化为三价 铁离子,同时三价铁离子水解形成针铁矿 (FeOOH) 沉淀,最终使5#反应器出口的二价铁离子质量浓 度小于1g/L,最好控制在0.3g/L~0.8g/L,达到 除铁效果.由于氧化水解过程生成酸 (H⁺),因此在 前4个反应器添加氧化锌以中和生成的酸.沉铁后 液经过固液分离后,部分底流循环至1#反应器,为 沉铁过程提供针铁矿晶种,以促进溶液中针铁矿的 形成.

沉铁过程操作的关键是合理调节反应器内氧气 的通入量,使溶液中的亚铁离子缓慢氧化为三价铁 离子,从而保证溶液中的反应状态始终保持在适合 生成针铁矿条件的范围之内.同时必须合理调节氧 化锌的加入量,保持溶液 pH 值在 2.5~3.5 内.流 程现场工作人员主要是根据经验和人为设定的反应 器出口亚铁离子浓度来调节氧气的通入量和氧化锌 的添加量,使亚铁离子的氧化速率不会过高.但是, 由于流程入口溶液的亚铁离子浓度可能不合理.且溶 液中铜离子的浓度不同,其催化效果也不一样,仅依 靠操作经验难以合理的调节氧气和氧化锌的加入量, 使亚铁离子的氧化速率控制在合适的范围内.因此,





需要在分析沉铁过程反应机理的基础上,建立亚铁 离子氧化速率的最优计算模型,优化控制反应过程 氧气和氧化锌的添加量,使得溶液环境适合生成针 铁矿沉淀,达到满足工艺目标和保证针铁矿质量的 目的.

2 沉铁过程动态模型

针铁矿法沉铁过程主要的状态量为 Fe²⁺、Fe³⁺ 和 H⁺ 的浓度, 其涉及的主要化学反应如式 (1) ~ (3) 所示^[18].

氧化反应:

$$2 \text{Fe}^{2+} + 2 \text{H}^+ + 0.5 \text{O}_2 \rightarrow 2 \text{Fe}^{3+} + \text{H}_2 \text{O}$$
 (1)

水解反应:

$$\mathrm{Fe}^{3+} + 2\mathrm{H}_2\mathrm{O} \to \mathrm{FeOOH} + 3\mathrm{H}^+$$
 (2)

中和反应:

$$2\mathrm{H}^{+} + \mathrm{ZnO} \to \mathrm{Zn}^{2+} + \mathrm{H}_2\mathrm{O}$$
 (3)

反应器中 Fe^{2+} 、 Fe^{3+} 和 H^+ 浓度的变化主要 是受上述 3 个化学反应的影响,根据前期的研究^[16] 和理想连续搅拌反应器模型特性,各个反应器内 Fe^{2+} 、 Fe^{3+} 和 H^+ 变化规律如式 (4) 所示,即为沉 铁过程第 i 个反应器的动态模型 ($i = 1, 2, \dots, 5$).

$$\frac{dC_{\rm Fe^{2+}}^{i}}{dt} = \frac{F}{V} \left(C_{\rm Fe^{2+},in} - C_{\rm Fe^{2+}}^{i} \right) - r_{\rm Fe^{2+}} \\
\frac{dC_{\rm Fe^{3+}}^{i}}{dt} = \frac{F}{V} \left(C_{\rm Fe^{3+},in} - C_{\rm Fe^{3+}}^{i} \right) - \left(r_{\rm Fe^{3+}} - r_{\rm Fe^{2+}} \right) \\
\frac{dC_{\rm H^{+}}^{i}}{dt} = \frac{F}{V} \left(C_{\rm H^{+},in} - C_{\rm H^{+}}^{i} \right) - \left(r_{\rm H^{+}} + r_{\rm Fe^{2+}} - 3r_{\rm Fe^{3+}} \right)$$
(4)

其中, $C_{\text{Fe}^{2+}}^{i}$ 、 $C_{\text{Fe}^{3+}}^{i}$ 和 $C_{\text{H}^{+}}^{i}$ 分别为第 *i* 个反应器内 Fe²⁺、Fe³⁺和 H⁺的摩尔浓度; $C_{\text{Fe}^{2+},\text{in}}$ 、 $C_{\text{Fe}^{3+},\text{in}}$ 和 $C_{\text{H}^{+},\text{in}}$ 分别表示反应器入口的 Fe²⁺、Fe³⁺和 H⁺的 摩尔浓度; *F*和 *V*分别为入口溶液的流量和反应器 的体积; $r_{\text{Fe}^{2+}}^{i}$ 、 $r_{\text{Fe}^{3+}}^{i}$ 和 $r_{\text{H}^{+}}^{i}$ 分别为第 *i* 个反应器内 氧化反应、水解反应和中和反应的反应速率. 特别值 得说明的是: 第 *i* 个反应器出口的离子浓度即为第 *i*+1 个反应器入口的离子浓度 (*i*=1,2,3,4).

在 Cu²⁺ 的催化作用下, Fe²⁺ 被氧气氧化的过 程包含 2 个反应步骤^[19]:

$$Fe^{2+} + Cu^{2+} \to Fe^{3+} + Cu^{+}$$
 (5)

$$4Cu^{+} + O_2 + 4H^{+} \rightarrow 4Cu^{2+} + 2H_2O$$
 (6)

根据冶金过程化学反应动力学,该反应的反应 速率为^[20]

$$r_{\mathrm{Fe}^{2+}} = k_1 C_{\mathrm{Cu}}^{\varepsilon} C_{\mathrm{Fe}^{2+}}^{\alpha} C_{\mathrm{O}_2}^{\beta} C_{\mathrm{H}^+}^{\gamma} \tag{7}$$

其中, k1 为反应速率常数, 只与温度和活化能有关;

 C_{Cu} 和 C_{O_2} 分别为反应器内 Cu²⁺ 和氧气的摩尔浓度; ε , α , β 和 γ 分别是反应级数.

氧气在溶液中的浓度以及水解反应和中和反应的反应速率分别为^[16]

$$C_{\rm O_2} = \ln\left(\lambda g + 1\right) \tag{8}$$

$$r_{\rm Fe^{3+}} = k_2 C_{\rm Fe^{3+}} \tag{9}$$

$$r_{\mathrm{H}^+} = \eta m C_{\mathrm{H}^+} \tag{10}$$

其中, λ 为氧气溶解系数; g 为反应器通入的氧气量; k_1 和 η 分别是反应速率常数; m 为反应器内添加的 氧化锌量.

由上述分析可知, 沉铁过程的控制量 为氧气和氧化锌添加量, 设状态变量为 $\boldsymbol{x} = [C_{\text{Fe}^{2+}}, C_{\text{Fe}^{3+}}, C_{\text{H}^+}]^{\text{T}},$ 初始状态量为 $\boldsymbol{x}_{\text{in}} = [C_{\text{Fe}^{2+},\text{in}}, C_{\text{Fe}^{3+},\text{in}}, C_{\text{H}^+,\text{in}}]^{\text{T}},$ 控制量为 $\boldsymbol{u} = [g, m]^{\text{T}},$ 则由式 (4)和式 (7)~(10)可得沉铁过程的状态空 间模型:

$$\dot{\boldsymbol{x}} = A\boldsymbol{x} + B\boldsymbol{x}_{\rm in} + \boldsymbol{\phi}\left(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{u}\right) \tag{11}$$

其中,

$$A = \begin{bmatrix} -\frac{F}{V} & 0 & 0\\ 0 & -\frac{F}{V} & 0\\ 0 & 0 & -\frac{F}{V} \end{bmatrix}, B = \begin{bmatrix} \frac{F}{V} & 0 & 0\\ 0 & \frac{F}{V} & 0\\ 0 & 0 & \frac{F}{V} \end{bmatrix}$$
$$\phi(\mathbf{x}, \mathbf{u}) = \begin{bmatrix} -r_{\mathrm{Fe}^{2+}} \\ r_{\mathrm{Fe}^{2+}} - r_{\mathrm{Fe}^{3+}} \\ 3r_{\mathrm{Fe}^{3+}} - r_{\mathrm{Fe}^{2+}} - r_{\mathrm{H}^{+}} \end{bmatrix}$$

3 沉铁过程氧化速率优化控制

3.1 反应器出口亚铁离子浓度优化设定

沉铁过程反应器出口的亚铁离子浓度是整个 流程的关键工艺指标,每个反应器出口亚铁离子 浓度的下降梯度反映了反应器内亚铁离子的氧 化量.因此,为了保证反应器内针铁矿的形成条 件,需要根据工艺要求合理设定每个反应器的亚 铁离子氧化量,即每个反应器出口的亚铁离子浓 度,作为沉铁过程氧化速率优化控制模型的终端 约束条件.设每个反应器亚铁离子的氧化量分别为 $\Delta Fe^{2+}_{1}, \Delta Fe^{2+}_{2}, \Delta Fe^{2+}_{3}, \Delta Fe^{2+}_{4}$ 和 ΔFe^{2+}_{5} ,其 计算公式为

$$\Delta \mathrm{Fe}^{2+}{}_{i} = \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},i-1} - \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},i}, \quad i = 1, 2, 3, 4, 5$$
(12)

其中, $\rho_{\text{Fe}^{2+},0}$ 表示沉铁流程入口的亚铁离子质量浓度; $\rho_{\text{Fe}^{2+},i}$ 表示第 i 个反应器出口的亚铁离子质量 浓度设定值.

同样, 定义每个反应器三价铁离子的下降梯度 $\Delta \text{Fe}^{2+}_{i}$ 为

$$\Delta \mathrm{Fe}^{3+}{}_{i} = \rho_{\mathrm{Fe}^{3+},i-1} - \rho_{\mathrm{Fe}^{3+},i}, \quad i = 1, 2, 3, 4, 5$$
(13)

其中, $\rho_{\text{Fe}^{3+},0}$ 表示沉铁流程入口的三价铁离子质量 浓度; $\rho_{\text{Fe}^{3+},i}$ 表示第 i 个反应器出口的三价铁离子 质量浓度设定值.

根据针铁矿法沉铁流程工艺指标要求,每个反应器出口的亚铁离子和三价铁离子的质量浓度必须 在工艺要求的范围内,其约束条件为

$$\begin{cases} 75 \% \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},0} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},1} \leq 85 \% \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},0} \\ 45 \% \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},0} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},2} \leq 55 \% \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},0} \\ 18 \% \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},0} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},3} \leq 26 \% \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},0} \\ 9 \% \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},0} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},4} \leq 15 \% \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},0} \\ 0.3 \,\mathrm{g/L} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{2+},5} \leq 0.8 \,\mathrm{g/L} \\ 1 \,\mathrm{g/L} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{3+},1} \leq 2 \,\mathrm{g/L} \\ 0.8 \,\mathrm{g/L} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{3+},2} \leq 1.2 \,\mathrm{g/L} \\ 0.5 \,\mathrm{g/L} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{3+},3} \leq 1 \,\mathrm{g/L} \\ 0.5 \,\mathrm{g/L} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{3+},4} \leq 1 \,\mathrm{g/L} \\ 0.1 \,\mathrm{g/L} \leq \rho_{\mathrm{Fe}^{3+},5} \leq 0.5 \,\mathrm{g/L} \end{cases}$$
(15)

由沉铁过程发生的化学反应可知, 亚铁离子的 氧化反应是消耗 H⁺, 三价铁离子的水解反应是生成 H⁺. 根据质量守恒原理, 每个反应器内氧化水解反 应生成的 H⁺ 摩尔浓度为

$$\Delta C_{\mathrm{H}^+,i} = 3 \frac{\Delta \mathrm{Fe}^{3+}{}_i}{M} + 2 \frac{\Delta \mathrm{Fe}^{2+}{}_i}{M}, \quad i = 1, 2, 3, 4, 5$$
(16)

其中, $\Delta C_{\mathrm{H}^+,i}$ 为第 *i* 个反应器氧化水解反应生成的 H⁺ 浓度; *M* 为铁元素的相对原子质量, M = 55.845.

从针铁矿沉铁流程工艺图知,5#反应器没有添加氧化锌中和剂,因此在优化设定反应器出口的亚铁离子浓度时,要保证5#反应器生成的H⁺浓度在一定范围内.根据沉铁过程数据统计结果和工人的操作经验,5#反应器生成的H⁺浓度必须满足式(17),使5#反应器出口的pH符合生产流程要求.

$$\Delta C_{\rm H^+,5} \le 10^{-1.2} \tag{17}$$

由沉铁过程发生的化学反应可知,氧化反应氧 化的亚铁离子都生成了三价铁离子,因此每个反应 器沉淀的铁离子的质量浓度为

$$\Delta_i = \Delta \mathrm{Fe}^{2+}{}_i + \Delta \mathrm{Fe}^{3+}{}_i, \quad i = 1, 2, 3, 4, 5 \quad (18)$$

其中, Δ_i 表示第 *i* 个反应器沉淀的铁离子的质量浓度, 即第 *i* 个反应器有 Δ_i 的铁离子形成了针铁矿沉淀.

为保针铁矿沉淀的形成,反应器内三价铁离子的质量浓度必须小于2g/L,则要求亚铁离子的氧化速度不能太快也不能太慢,因此反应器内沉淀的铁离子应保持在一定范围内.根据针铁矿流程工艺要求和沉铁过程数据统计分析,5个反应器沉淀的铁离子的质量浓度之比尽量满足式(19).

$$\Delta_1 : \Delta_2 : \Delta_3 : \Delta_4 : \Delta_5 = 2 : 3 : 3 : 1 : 1$$
(19)

通过定义辅助函数^[21],将式 (19)转化为优化目标

$$J = \sum_{i=1}^{5} \left(\frac{\Delta_i}{\Delta} - d_i\right)^2 \tag{20}$$

其中, $\Delta = \Delta_1 + \Delta_2 + \Delta_3 + \Delta_4 + \Delta_5$, 表示 整个沉铁流程沉淀的铁离子的质量浓度; $d_i = [0.2, 0.3, 0.3, 0.1, 0.1].$

综合上述的分析可知, 沉铁过程反应器出口的 亚铁离子浓度优化设定模型为:最小化式 (20), 同时 满足约束条件式 (12)~(18), 以求解最优的反应器 出口亚铁离子和三价铁离子浓度.

3.2 沉铁过程氧化速率优化控制计算模型

3.2.1 优化控制目标

针铁矿法沉铁过程不仅要保证反应过程三价铁 离子质量浓度始终低于 2 g/L, 而且要合理控制亚铁 离子的氧化速率. 由于流程入口的三价铁离子质量 浓度已符合生成针铁矿沉淀的要求, 因此只需要保 证反应过程中亚铁离子的氧化速率小于三价铁离子 的水解速率, 即可满足针铁矿生成的工艺要求. 然 而, 如果氧化速率太低的话, 会影响整个流程的沉 铁效果. 综合考虑, 在反应过程中尽量使反应器内亚 铁离子的氧化速率等于三价铁离子的水解速率, 即 反应器内氧化多少亚铁离子就沉淀多少三价铁离子, 达到现场操作的理想状态.

由式 (7) 和式 (9), 亚铁离子的氧化速率为 $r_{\text{Fe}^{2+}}$ 以及三价铁离子的反应速率为 $r_{\text{Fe}^{3+}}$,因此, 沉铁过 程氧化速率优化控制的目标为

$$\min H = \int_{0}^{t_{f}} \left[r_{\mathrm{Fe}^{3+}} \left(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{u}, t \right) - r_{\mathrm{Fe}^{2+}} \left(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{u}, t \right) \right]^{2} \mathrm{d}t$$
(21)

其中, t_f 为溶液在反应器内的平均停留时间, $t_f = V/F$; H为氧化速率优化控制目标函数.

值得说明的是由于沉铁流程设计的入口流量使 得溶液在反应器内的平均停留时间 t_f 约为2h,经 过 t_f 后,被采样化验的溶液已溢流出反应器,此外, 沉铁过程关键的离子浓度 (亚铁离子、三价铁离子和 铜离子等)每 2h 离线化验一次.因此,本文的氧化 速率优化控制模型以离子浓度某一化验时刻作为起 始时间 0, 计算时间跨度 t_f 内反应器的最优控制率, 再以下一化验时刻为起始时间 0, 求解出下一个时间 跨度内的最优控制率,如此反复实现长流程的优化 控制.

3.2.2 优化控制模型约束条件

1) 沉铁过程状态空间方程

沉铁过程的动力学模型描述的是反应过程中亚 铁离子、三价铁离子和氢离子的变化规律,其状态空 间方程可由式 (11) 得

$$\dot{\boldsymbol{x}} = A\boldsymbol{x} + B\boldsymbol{x}_{\text{in}} + \boldsymbol{\phi}\left(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{u}\right) := \boldsymbol{f}\left(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{u}, t\right) \qquad (22)$$

$$\boldsymbol{x}\left(0\right) = \boldsymbol{x}_{\rm in} \tag{23}$$

2) 控制量约束

沉铁过程的氧气和氧化锌添加量必须在流程要 求范围内,添加量过小则不能达到沉铁效果,过大则 会增加生产成本.根据工艺要求,控制量的约束为

$$\boldsymbol{u}_{\min} \le \boldsymbol{u}\left(t\right) \le \boldsymbol{u}_{\max} \tag{24}$$

其中, \boldsymbol{u}_{\min} 和 \boldsymbol{u}_{\max} 分别为控制量的最小值和最大值.

3) 终端条件约束

根据沉铁过程反应器出口亚铁离子浓度优化 设定模型,可求解出反应器最优的出口亚铁离子和 三价铁离子的质量浓度.设由优化设定模型求解出 的最优亚铁离子和三价铁离子的摩尔浓度分别为 *G*_{Fe²⁺}和*G*_{Fe³⁺},因此终端约束条件为

$$\begin{aligned}
x_1(t_f) &= G_{\mathrm{Fe}^{2+}} \\
x_2(t_f) &= G_{\mathrm{Fe}^{3+}}
\end{aligned}$$
(25)

此外,反应器出口溶液的 pH 也应保持在工艺 要求的范围内,其约束条件为

$$C_{\mathrm{H^+,min}} \le x_3 \left(t_f \right) \le C_{\mathrm{H^+,max}} \tag{26}$$

其中, C_{H+,min} 和 C_{H+,max} 分别表示反应器出口氢离 子摩尔浓度的最小值和最大值.

因此, 沉铁过程氧化速率优化控制是: 寻找最优 的控制量 $u^*(t)$, 使目标函数 H 最小, 同时满足约束 条件式 (24)~(26). 该最优控制问题可描述为

$$\begin{aligned}
 & u^* = \arg\min_{u} H = \\
 \int_{0}^{t_f} \left[r_{\mathrm{Fe}^{3+}} \left(x, u, t \right) - r_{\mathrm{Fe}^{2+}} \left(x, u, t \right) \right]^2 \mathrm{d}t \\
 & \dot{x} = f \left(x, u, t \right) \\
 & x \left(0 \right) = x_{\mathrm{in}} \\
 & u_{\mathrm{min}} \leq u \left(t \right) \leq u_{\mathrm{max}} \\
 & x_1 \left(t_f \right) = G_{\mathrm{Fe}^{2+}} \\
 & x_2 \left(t_f \right) = G_{\mathrm{Fe}^{3+}} \\
 & C_{\mathrm{H}^+,\mathrm{min}} \leq x_3 \left(t_f \right) \leq C_{\mathrm{H}^+,\mathrm{max}}
 \end{aligned}$$
(27)

问题 1. 求解式 (27) 所描述的氧化速率优化控制模型的最优控制率.

3.2.3 优化控制模型求解方法

1) 问题转换

最优控制的求解问题实质上是求泛函极值的变 分学问题,其主要研究来源于变分法和 Pontriyagin 极小值原理^[22].此外,近似动态规划方法^[23]和控制 参数方法^[24]也是求解最优控制问题的有效方法.而 控制参数方法是一种易于求解和应用的最优控制数 值求解算法,其主要思想是将时间区间划分为一系 列子区间,预给定控制函数为近似的分段常数函数 或者分段线性函数,从而将求解最优控制问题转换 为求解一系列最优控制参数的非线性规划 (Nonlinear programming, NLP).控制参数化方法有可靠 的理论基础和数学证明,可以解决复杂非线性系统 的最优控制问题^[24].因此,本文基于控制参数化的 思想将最优控制问题1转换为易于求解的 NLP 问 题.

为采用控制参数化方法将最优控制问题转换为 近似问题,把优化模型求解时间区间 $[0, t_f]$ 分成 N个子区间 $[t_{n-1}, t_n]$ $(n = 1, 2, \dots, N)$,如式 (28) 所 示.

$$0 = t_0 < t_1 < t_2 < \dots < t_{N-1} < t_N = t_f \quad (28)$$

由于优化计算模型的控制量为 2 维向量, 定义 一系列常数向量 $\sigma^n \in \mathbf{R}^2, n = 1, 2, \dots, N$ 则

$$\boldsymbol{\sigma} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{\sigma}^1, \boldsymbol{\sigma}^2, \cdots, \boldsymbol{\sigma}^N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sigma_1^1, \sigma_1^2, \cdots, \sigma_1^N \\ \sigma_2^1, \sigma_2^2, \cdots, \sigma_2^N \end{bmatrix} (29)$$

其中, σ_1^n 为第 n 段时间内氧气通入量; σ_2^n 为第 n 段时间内氧化锌加入量.

将问题 (P1) 的控制量设计为与常数向量 σ^n 有 关的分段常函数,即

$$\boldsymbol{u}^{N}(t | \boldsymbol{\sigma}) = \sum_{n=1}^{N} \boldsymbol{\sigma}^{n} \chi_{[t_{n-1}, t_{n})}(t), \quad t \in [0, t_{f}) \quad (30)$$

其中, $t_n(n = 0, 1, \dots, N - 1)$ 为控制量切换的时间 点; 函数 $\chi_{[t_{n-1}, t_n)}(t)$ 的定义为

$$\chi_{[t_{n-1},t_n)}(t) = \begin{cases} 1, & t \in [t_{n-1},t_n) \\ 0, & \not\equiv t \end{cases}$$
(31)

在
$$t = t_f$$
时, 控制量为

$$\boldsymbol{u}^{N}\left(t_{f} \left| \boldsymbol{\sigma}\right.\right) = \boldsymbol{u}^{N}\left(t_{f}^{-} \left| \boldsymbol{\sigma}\right.\right) = \lim_{t \to t_{f}^{-}} \boldsymbol{u}^{N}\left(t \left| \boldsymbol{\sigma}\right.\right) \quad (32)$$

将分段常函数控制量式 (30) 代入系统动态方程, 有

$$\dot{\boldsymbol{x}}(t) = \sum_{n=1}^{N} \boldsymbol{f}\left(\boldsymbol{x}(t), \boldsymbol{\sigma}^{i}\right) \chi_{\left[t_{n-1}, t_{n}\right)}(t), \quad t \in \left[0, t_{f}\right]$$
(33)

优化计算模型的终端等式约束 (25) 和不等式约 束 (26) 变为

$$\begin{cases} x_1 \left(t_f | \boldsymbol{u}^N \left(t_f | \boldsymbol{\sigma} \right) \right) = G_{\mathrm{Fe}^{2+}} \\ x_2 \left(t_f | \boldsymbol{u}^N \left(t_f | \boldsymbol{\sigma} \right) \right) = G_{\mathrm{Fe}^{3+}} \\ \begin{cases} x_3 \left(t_f | \boldsymbol{u}^N \left(t_f | \boldsymbol{\sigma} \right) \right) - C_{\mathrm{H}^+, \mathrm{max}} \leq 0 \\ C_{\mathrm{H}^+, \mathrm{min}} - x_3 \left(t_f | \boldsymbol{u}^N \left(t_f | \boldsymbol{\sigma} \right) \right) \leq 0 \end{cases}$$
(35)

采用四阶的龙格-库塔数值求解方法计算动态 方程 (22),则最优控制问题 1 可转换为易求解的 NLP 问题.

问题 2. 优化选择参数向量 σ^n ($u_{\min} \leq \sigma^n \leq u_{\max}$), 使得如下性能指标最小

$$H_{1} = \int_{0}^{t_{f}} [r_{\mathrm{Fe}^{3+}}(\boldsymbol{x}(t|\boldsymbol{\sigma}), \boldsymbol{u}(t|\boldsymbol{\sigma}), t) - r_{\mathrm{Fe}^{2+}}(\boldsymbol{x}(t|\boldsymbol{\sigma}), \boldsymbol{u}(t|\boldsymbol{\sigma}), t)]^{2} \mathrm{d}t \qquad (36)$$

同时满足约束式 (33)~(35).

2) 优化问题求解算法

问题 2 是 NLP 问题,可用很多数学优化算法求 解, 文献 [25-26] 采用的是基于梯度的优化方法. 然 而, 基于梯度的优化算法是局部优化算法,其所计算 的结果依赖初始值,不一定为全局最优解.本文采用 一种全局优化算法-状态转移优化算法^[27]来求解问 题 2, 这样不仅可以避免计算目标函数的梯度,而且 可以得到优化问题的全局最优解.

状态转移算法的基本思想是将目标函数的解看 作一个状态,通过状态转移实现解的迭代搜索,如式 (37)所示.

$$x_{k+1} = x_k + a_k d_k \tag{37}$$

其中, *x_k* 为第 *k* 步迭代的状态; *a_k* 为第 *k* 步的步长; *d_k* 为第 *k* 步的搜索方向.

状态转移算法采用旋转变换算子、平移变换算 子、伸缩变换算子和坐标变换算子四种算子进行迭 代寻优,各个转移算子的描述如下:

1) 伸缩变换算子

$$x_{k+1} = x_k + \gamma R_e x_k \tag{38}$$

其中, γ 表示伸缩因子, 为一正常数; $R_e \in \mathbf{R}^{n \times n}$ 是随机对角矩阵, 其元素服从高斯分布.

2) 旋转变换算子

$$x_{k+1} = x_k + \alpha \frac{1}{n \|x_k\|_2} R_r x_k \tag{39}$$

其中, α 是旋转因子, 为一个正常数; $R_r \in \mathbb{R}^{n \times n}$ 是 在区间 [-1,1] 上均匀分布的随机矩阵; $|\cdot|_2$ 表示 2 范数.

3) 坐标变换算子

$$x_{k+1} = x_k + \delta R_a x_k \tag{40}$$

其中, δ 表示轴变换因子,为一正常数; $R_a \in \mathbf{R}^{n \times n}$ 是随机对角矩阵,其元素服从高斯分布且仅存在一个随机位置为非零值.

4) 平移变换算子

$$x_{k+1} = x_k + \beta R_t \frac{x_k - x_{k-1}}{\|x_k - x_{k-1}\|_2}$$
(41)

其中, β 表示平移因子, 为一正常数; $R_t \in \mathbf{R}$ 为在区 间 [0,1] 上均匀分布的随机数.

状态转移优化算法求解无约束优化问题的算法 步骤为

步骤 1. 首先,设置寻优搜索的最大迭代次数和 算子变换产生的种群数 *SE*、 α 的最大值 α_{min} 和最 小值 α_{max} 和变换比例 *fc* 以 β , γ 和 δ 的值. 然后, 随机产生一个初始解.

步骤 2. 根据伸缩变换算子得到 SE 个解,通过 评价函数判断是否寻到更好的解,如果寻到,则根据 平移变换算子对 SE 个解进行平移; 否则不平移.

步骤 3. 根据旋转变换算子对步骤 2 中的个解进行变换,通过评价函数判断是否寻到更好的解,如果寻到,则根据平移变换算子对 SE 个解进行平移;否则不平移.

步骤 4. 根据坐标变换算子对步骤 3 中的个解进行变换,通过评价函数判断是否寻到更好的解,如果寻到,则根据平移变换算子对 SE 个解进行平移; 否则不平移.

步骤 5. 改变旋转因子: $\alpha = \alpha/fc$. 判断 α 是 否小于 α_{\min} , 如果小于, 则设置 $\alpha = \alpha_{\max}$.

步骤 6. 判断是否寻到最优解或者满足终止迭 代条件,如果是则停止搜索,输出最优结果;否则转 到步骤 2. 状态转移优化算法的详细介绍、算法收敛性分 析和算法验证可见文献 [27-28].对于带约束的优 化问题 2,采用罚函数的方法将约束问题转换为无约 束的优化问题,从而可以采用状态转移优化算法求 解问题 2 的最优控制率.

4 数值仿真及结果分析

以某湿法炼锌企业沉铁过程 5 个反应器为实验 仿真对象,流程生产数据采集于 2014 年 1 月份. 针 铁矿法沉铁流程的关键数据点和其采样间隔如表 2 所示.

表 2 沉铁流程数据检测点及采样时间

 Table 2
 The sample frequency of materials in process

数据点	采样频率
反应器入口或出口的 Zn ²⁺ 浓度 (g/L)	每8h 离线化验
反应器入口或出口的 Fe ²⁺ 浓度 (g/L)	每 2 h 离线化验
反应器入口或出口的 Fe ³⁺ 浓度 (g/L)	每 2h 离线化验
反应器入口或出口的 H ⁺ 浓度 (pH)	在线检测每 10 min 采样一次
反应器入口或出口的 Cu ²⁺ 浓度 (g/L)	每2h 离线化验
流量 (m ³ /h)	在线检测每 10 min 采样一次
氧化锌添加量 (t/h)	在线检测每 10 min 采样一次
氧气通入量 (m ³ /h)	在线检测每 10 min 采样一次

从表 2 可知, 沉铁过程的关键参数不都是连续 在线检测的, 特别是离子浓度每 2h 离线化验一次. 由于沉铁流程的集散控制系统每 10 min 从数据库 服务器中读取一次数据, 且根据人工操作经验, 每调 整一次控制量要求持续 10 min.因此在利用控制参 数化进行问题转换时, 将优化模型求解的时间区间 分为 12 等份, 即式 (28) 中 N = 12.

沉铁流程现场实行的是 8 小时倒班工作制, 采 用本文所提的优化控制方法对 2014 年 1 月 18 日的 一班 8 小时进行数值仿真实验.

首先,根据反应器出口亚铁离子浓度优化设定 模型求解出沉铁流程1月18日一组生产工况的反 应器出口亚铁离子和三价铁离子浓度的最优设定值. 其优化设定求解的结果如表3所示.然后,根据优化 设定结果,可得氧化速率优化控制模型的终端等式 约束,利用控制参数化的思想将最优控制模型转换 为 NLP 问题 (问题 2),并采用状态转移优化算法求 解.

考虑到状态转移优化算法的随机性,本文采用 随机生成的初始值进行 500 次问题求解,其结果统 计如表 4 所示.表 4 中三个性能指标分别为: 1) 求 解目标函数 H_1 的平均值 (Mean value, MV),用于 评价优化算法的求解精度; 2) 500 次计算中目标函 数值小于 10^{-3} 所占的比例 (Rate),此指标可评价 算法求解问题的成功率; 3) 求解问题的平均时间 (Mean time, MT),用于评价优化算法的求解速度. 此外为方便比较,在相同初始值条件下采用基于梯 度的优化算法 (Gradient-based)和改进的双粒子群 优化 (DPSO) 算法^[18] 对问题 2 进行求解,其对比结 果见表 4.

表 3 沉铁流程反应器出口铁离子浓度优化设定结果

Table 3The optimal setting results of reactor outlet
iron concentration in process

时间	离子	流程入口离	优化设定结果 (g/L)				
H1101		子浓度 (g/L)	1#	2#	3#	4#	5#
$1 \sim 18$	Fe^{2+}	10.71	8.36	5.35	2.87	1.39	0.49
1.410	Fe^{2+}	1.95	1.52	1.23	0.87	0.64	0.39

从表 4 可以看出,状态转移优化算法的 MV 和 Rate 都明显优于 Gradient-based 算法,而 Gradient-based 算法的求解速度约为状态转移优 化算法的 5 倍.但是,沉铁流程是长流程控制,其对 求解时间的限制较小,秒级的求解时间足以满足流 程控制的需求,且沉铁过程优化控制对算法的求解 精度和成功率要求高.同时,相对于 DPSO 算法,状 态转移优化算法的三个性能指标都有优越性.因此, 状态转移优化算法能更好地满足本文应用求解要求.

表 4 三种算法求解结果统计 Table 4 Comparison of optimal control and artificial manipulation

	MV	$\operatorname{Rate}(\%)$	MT(s)
状态转移优化算法	3.24×10^{-4}	98	0.87
Gradient-based	9.29×10^{-3}	91	0.16
DPSO	8.60×10^{-4}	95	2.58

选取状态转移算法某一次求解控制率的结果与 人工操作进行对比,其仿真结果如图 3 和图 4 所示. 图 3(a)~3(e)为5 个反应器优化控制计算所得的 氧气添加量和人工操作的氧气添加量对比结果. 图 3(f)为优化控制和人工操作相应的5#反应器出口 的亚铁离子浓度. 图 4(a)~4(e)为前4 个反应器优 化控制计算所得的氧化锌添加量和人工操作的氧化 锌添加量对比结果. 表5 统计了仿真时间内(8h)优 化控制和人工操作的氧气和氧化锌总添加量以及相 应的5#反应器出口亚铁离子浓度的标准差.

从图 3、图 4 和表 5 可知,实际过程中操作人员



图 3 优化控制和人工操作的氧气添加量和出口的亚铁离子浓度对比结果 Fig. 3 Comparison results of oxygen addition and outlet ferrous ion concentration between optimal control and artificial manipulation



图 4 优化控制和人工操作的氧化锌添加量对比结果

Fig. 4 Comparison results of zinc oxide addition between optimal control and artificial manipulation

|--|



	优化控制	人工操作
氧气添加总量 (m ³)	205438	212556
氧化锌添加总量 (t)	1379	1476
5# 反应器出口 Fe ²⁺ 浓度标准差 (g/L)	0.118	0.244

往往添加过量的氧气和氧化锌,以确保 5# 反应器 出口的亚铁离子浓度和 pH 值在工艺要求范围之内, 从而造成浪费,增加了生产成本.而且,由于人工操 作的不及时和盲目性,使得 5# 反应器出口的亚铁 离子浓度波动大 (标准差为 0.244 g/L),且存在超出 工艺要求范围的情况,如图 3 (f) 和表 5 所示,不利 于后续流程的稳定生产.而优化控制模型所计算的 氧气和氧化锌的量,减小了流程 5# 反应器出口的 亚铁离子浓度的波动性 (标准差为 0.118 g/L),且都 在工艺要求的范围内.

氧化速率优化控制是根据实时生产情况合理控 制反应过程中亚铁离子的氧化速率,使整个反应过 程三价铁离子的浓度始终保持较低的水平,符合生 成针铁矿沉淀的要求,以保证整个沉铁流程的除铁 效果和针铁矿的质量.由于实际过程中反应器内部 的离子浓度不可测,只有化验的反应器出口的离子 浓度.因此,人工操作条件下无法通过亚铁离子浓度 变化曲线的斜率计算反应器内的氧化速率.但是反 应器出口的下降梯度可以在一定程度上反映反应器 内的氧化速率.反应器出口亚铁离子和三价铁离子 浓度的下降梯度计算公式如式 (12)和式 (13).

根据仿真结果和沉铁过程动态模型求解,图 5 和图 6 分别显示了在优化控制和人工操作条件下 5 个反应器内亚铁离子浓度和三价铁离子浓度的变化 曲线,其中 T_i (i = 1, 2, 3, 4, 5)表示溶液流出第i 个 反应器的时间.表 6为在优化控制和人工操作下反 应器出口亚铁离子和三价铁离子浓度.

表 6 优化控制和人工操作下反应器出口的离子浓度对比 Table 6 Comparison of reactor outlet ion concentration under optimal control and artificial manipulation

对比指标	操作类型	1#	2#	3#	4#	5#
反应哭出口 Fe^{2+} 浓度 (σ/I .)	优化控制	8.21	5.43	2.75	1.28	0.50
	人工操作	8.50	5.81	2.37	1.40	0.74
反应哭出口 Fe ³⁺ 浓度 (g/L)	优化控制	1.48	1.20	0.91	0.58	0.33
	人工操作	1.36	0.79	0.83	0.70	0.52

沉铁流程实际操作过程中,要求现场人员控制 反应器出口的亚铁离子浓度在工艺范围内,因此,人 工操作下的反应器出口亚铁离子浓度在合理的范 围内. 如图 5 所示, 优化控制和人工操作下的反应 器出口亚铁离子浓度相差不大. 而现场流程对反应 器出口三价铁离子浓度的范围没有要求,如图 6 所 示. 由于人工操作条件下 3# 反应器亚铁离子浓度 的氧化量(3.44g/L)大于优化控制条件下的氧化量 (2.68g/L), 从而导致 3# 反应器出口的三价铁离子 浓度 (0.83 g/L) 大于 3# 反应器入口的三价铁离子 浓度 (0.79 g/L). 显然, 人工操作下 3# 反应器亚铁 离子的氧化速率大于三价铁离子的水解速率,不符 合针铁矿沉淀形成的条件. 而优化控制条件下反应 器出口三价铁离子浓度的下降梯度始终为正,即优 化控制模型计算所得的控制量可以保证反应器内亚 铁离子的氧化速率始终小于三价铁离子的水解速率, 符合生成针铁矿的条件.









通过对比分析可以得出,氧化速率优化控制模型计算所得的控制量不仅可以保证反应过程中的亚 铁离子氧化速率在符合针铁矿形成的范围之内,而 且使流程的关键工艺指标波动小,稳定生产流程.

5 结论

湿法炼锌针铁矿法沉铁过程, 亚铁离子的氧化 速率是影响针铁矿沉淀形成的重要因素. 本文针对 沉铁过程氧化速率的控制进行研究, 首先, 根据针铁 矿沉淀形成的条件和流程工艺要求, 优化设定流程 中每个反应器出口的亚铁离子浓度. 然后, 建立针铁 矿法沉铁过程氧化速率优化控制模型, 采用基于控 制参数化方法将优化控制求解问题转化为易于求解 的非线性规划, 并用状态转移优化算法来求解最优 的氧气和氧化锌控制率, 使反应过程中亚铁离子的 氧化速率和三价铁离子浓度保持在适合生成针铁矿 的范围之内.最后,仿真结果表明,优化控制模型计 算所得的控制量不仅可以保证反应过程中亚铁离子 的氧化速率适合生成针铁矿沉淀,而且能够减小5# 反应器出口亚铁离子浓度的波动范围.

References

- 1 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
- 2 Ismael M R C, Carvalho J M R. Iron recovery from sulphate leach liquors in zinc hydrometallurgy. *Minerals Engineering*, 2003, **16**(1): 31–39
- 3 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
- 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 Gui Wei-Hua, Yang Chun-Hua, Li Yong-Gang, He Jian-Jun, Yin Lin-Zi. Data-driven operational-pattern optimization for copper flash smelting process. Acta Automatica Sinica, 2009, **35**(6): 717-724 (桂卫华, 阳春华, 李勇刚, 贺建军, 尹林子, 基于数据驱动的铜

(注上中, 阳春中, 于另南, 页建中, 户林丁, 金丁 数据起动访问 闪速熔炼过程操作模式优化及应用. 自动化学报, 2009, **35**(6): 717-724)

6 Chai Tian-You, Ding Jin-Liang, Wang Hong, Su Chun-Yi. Hybrid intelligent optimal control method for operation of complex industrial processes. Acta Automatica Sinica, 2008, 34(5): 505-515

(柴天佑,丁进良,王宏,苏春翌.复杂工业过程运行的混合智能优化 控制方法.自动化学报,2008,34(5):505-515)

- 7 Ma Tian-Yu, Gui Wei-Hua. Optimal control for continuous bauxite grinding process in ball-mill. Control Theory & Applications, 2012, 29(10): 1339-1347 (马天雨, 桂卫华. 铝土矿连续磨矿过程球磨机优化控制. 控制理论 与应用, 2012, 29(10): 1339-1347)
- 8 Ye J X, Xu H L, Feng E M, Xiu Z L. Optimization of a fed-batch bioreactor for 1, 3-propanediol production using hybrid nonlinear optimal control. *Journal of Process Control*, 2014, **24**(10): 1556-1569
- 9 Zhou P, Chai T Y, Wang H. Intelligent optimal-setting control for grinding circuits of mineral processing process. *IEEE Transactions on Automation Science and Engineering*, 2009, 6(4): 730-743
- 10 Zhou P, Chai T Y, Sun J. Intelligence-based supervisory control for optimal operation of a DCS-controlled grinding system. *IEEE Transactions on Control Systems Technology*, 2013, **21**(1): 162–175
- 11 Li Y G, Gui W H, Teo K L, Zhu H Q, Chai Q Q. Optimal control for zinc solution purification based on interacting CSTR models. *Journal of Process Control*, 2012, **22**(10): 1878-1889
- 12 Yang C H, Gui W H, Kong L S, Wang Y L. Modeling and optimal-setting control of blending process in a metallurgical industry. Computers & Chemical Engineering, 2009, 33(7): 1289-1297

- 13 Sun B, Gui W H, Wang Y L, Yang C H. Intelligent optimal setting control of a cobalt removal process. *Journal of Process Control*, 2014, **24**(5): 586-599
- 14 Chai T Y, Ding J L, Wu F H. Hybrid intelligent control for optimal operation of shaft furnace roasting process. Control Engineering Practice, 2011, 19(3): 264–275
- 15 Loxton R, Lin Q, Teo K L. Minimizing control variation in nonlinear optimal control. Automatica, 2013, 49(9): 2652-2664
- 16 Xie Y F, Xie S W, Chen X F, Gui W H, Yang C H, Caccetta L. An integrated predictive model with an on-line updating strategy for iron precipitation in zinc hydrometallurgy. *Hydrometallurgy*, 2015, **151**(1): 62–72
- 17 Marsalek R. The reduction of zinc using goethite process and adsorption of Pb+II, Cu+II and Cr+III on selected precipitate. International Journal of Environmental Science and Development, 2011, **2**(4): 253–258
- 18 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 (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)
- Stumm W, Lee G G. Oxygenation of ferrous iorn. Industry & Engineering Chemistry, 1961, 53(2): 143-146
- 20 Seetharaman S. Treatise on Process Metallurgy, Volume 1: Process Fundamentals. Netherlands: Elsevier, 2014. 831-852
- 21 Tsoulos I G, Stavrakoudis A. On locating all roots of systems of nonlinear equations inside bounded domain using global optimization methods. Nonlinear Analysis: Real World Applications, 2010, 11(4): 2465-2471
- 22 Pontryagin L S. Mathematical Theory of Optimal Processes. New York: Gordon and Breach Science Publishers, 1986.
- 23 Luus R. Optimal control by dynamic programming using systematic reduction in grid size. International Journal of Control, 1990, 51(5): 995-1013
- 24 Teo K L, Goh C J, Wong K H. A unified computational approach to optimal control problems. New York: Longman Scientific and Technical, 1991.
- 25 Goh C J, Teo K L. Control parametrization: a unified approach to optimal control problems with general constraints. Automatica, 1988, $\mathbf{24}(1)$: 3–18
- 26 Teo K L, Rehbock V, Jennings L S. A New computational algorithm for functional inequality constrained optimization problems. Automatica, 1993, 29(3): 789–792
- 27 Zhou X J, Yang C H, Gui W H. State transition algorithm. Journal of Industrial and Management Optimization, 2012, 8(4): 1039–1056
- 28 Zhou X J, Yang C H, Gui W H. Nonlinear system identification and control using state transition algorithm. Applied Mathematics and Computation, 2014, 226: 169–179



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.本文通信作者.

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

(XIE Yong-Fang Ph. D., professor at Central South University. His research interest covers modeling and optimal control of complex industrial pro-

cess, distributed robust control. Corresponding author of this paper.)



李勇刚 博士, 中南大学教授. 主要研究 方向为工业过程软测量建模和优化控制, 智能混合控制和专家控制.

E-mail: liyonggang@csu.edu.cn $% \mathcal{C} = \mathcal{C$

(LI Yong-Gang Ph. D., professor at Central South University. His research interest covers soft sensor modeling and optimal control of industrial process,

intelligent hybrid control and expert 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 pro-

cess, intelligent automation control system.)



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 research interest covers modeling and op-

timal control of complex industrial process and industrial large system control theory and application.)