

文章编号: 1001-0920(2003)04-0479-04

氨合成反应器出口氨含量的预测模型研究

郑启富

(浙江工业大学 浙西分校, 浙江 衢州 324006)

摘要: 径向基函数网络(RBFN)具有很强的非线性表达能力, 循环子空间回归(CSR)可在更广的空间内为网络模型寻找最优的参数。应用 RBFN-CSR 方法为出口氨含量建模, 取得了满意的效果。

关键词: 径向基函数网络; 循环子空间回归; 氨合成; 预测模型

中图分类号: TP183; TQ 018

文献标识码: A

Prediction model of ammonia content at the exit of ammonia synthesis reactor

ZHENG Qifu

(Department of Chemical Engineering, Attached to Zhejiang University of Technology, Quzhou 324006, China)

Abstract: A prediction model is proposed for the relation between the ammonia content and its influencing factors. The model can predict the ammonia content, guide production and optimize the operational parameters of the reactor. Because radial basis function networks have strong capability of nonlinear expression and cyclic subspace regression can find the optimal coefficient in wider space, RBFN-CSR approach is applied to modeling for the ammonia content at the exit of the ammonia synthesis reactor, and satisfying results is obtained.

Key words: Radial basis function; Cyclic subspace regression; Ammonia synthesis; Prediction model

1 引言

合成氨工业在国民经济中占有十分重要的地位。目前,我国拥有年产 30 万吨大型合成氨装置 19 套^[1],小合成氨厂 1 060 家左右^[2]。因此,优化工艺过程及指标,降低生产成本,能显著地提高合成氨生产的经济效益。现有的合成氨工艺优化措施,主要有研制新型高效的催化剂,综合利用能源,改进反应器结构等。本文从新的角度出发,采用径向基函数网络(RBFN),结合循环子空间回归(CSR)方法,建立氨合成反应器出口氨含量的预测模型,用以指导合成氨的生产和反应器的优化。

2 RBFN-CSR 方法

2.1 径向基函数网络

RBFN 是一种新颖有效的前馈式神经网络,

它具有很强的非线性表达能力。设 RBFN 的输入、输出和隐结点分别为 n, m 和 q , 其拓扑结构如图 1 所示。

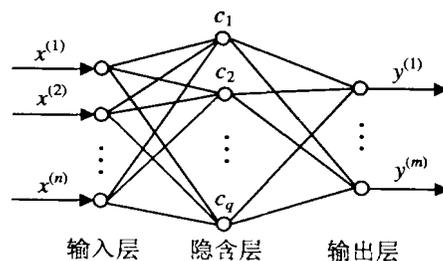


图 1 RBFN 的拓扑结构

本文选用高斯函数作为隐结点的径向基活化函数,各隐结点的输出为

收稿日期: 2002-06-24; 修回日期: 2002-09-16

作者简介: 郑启富(1970—),男,浙江兰溪人,讲师,硕士,从事化工系统工程、智能信息处理等研究。

$$G_h(x) = \exp\left(-\frac{x - c_h}{\sigma_h}\right)^2$$

$$h = 1, 2, \dots, q \quad (1)$$

其中: x 为输入矢量, c_h 和 σ_h 分别为第 h 个隐结点径向基函数的中心矢量和宽度参数。

RBFN 的输出为隐结点输出的线性加权和, 即

$$\hat{y}_i^{(j)} = \sum_{h=1}^q w_{hj} G_h(x_i), \quad j = 1, 2, \dots, m \quad (2)$$

其中 w_{hj} 为第 h 个隐结点到第 j 个输出结点的连接权。

RBFN 的性能取决于其结构和参数, 包括隐结点数 q , 各隐结点径向基函数的中心矢量 c_h 和宽度参数 σ_h 。它们的选择较为困难, 一般可用遗传算法、正交最小二乘算法等, 但这些方法计算量大, 且很难保证得到最优解。本文采用文献[3]提出的方法, 将隐结点数 q 取为训练样本集的样本数 p , 各隐结点的 c_h 取为相应的样本值, 而 σ_h 值则采用尝试方法选取。在确定了 q , c_h 和 σ_h 之后, 可由式(1)计算得到活化矩阵 G , 然后求解

$$Y = G \times W \quad (3)$$

其中 Y 为因变量矩阵, 从而得到网络的权矩阵 W 。

式(3)为多元线性回归算式, 常用最小二乘回归(LSR)方法求解, 要求样本数为自变量维数的 5~7 倍。然而, 这里的自变量维数等于样本数, 自变量维数相对过高, 难免存在显著的复共线性, 使回归模型极不稳定。为此, 本文应用 CSR 方法来克服这一问题。

2.2 循环子空间回归

CSR 方法^[4,5]从空间 $R(G^T)$ 中选取一系列子空间, 求得一系列最小二乘解, 并依据一定的准则选择最优解, 从而可消除自变量间的复共线性, 得到性能优良的模型。

设 G 为 $p \times q$ 维矩阵, 其秩为 k 。记 $S_l(1 \leq l \leq k)$ 为 $R(G^T)$ 的 l 维 Krylov 子空间, 而它的前 j 个线性无关向量所构成的 j 维子空间记为 S_l^j 。CSR 的策略是步进地改变整数 l 和 j , 即以 1 为步长, 令 l 从 1 到 k , j 从 1 到 l ; 然后以 j 维子空间 S_l^j 为解空间, 求最小二乘解, 这样共得到 $(k^2 + k)/2$ 个回归模型。这些回归模型不仅包容了 LSR, PCR (主成分回归) 和 PLSR (偏最小二乘回归) 模型, 还包括许多中间回归模型, 因此 CSR 可在更大的范围内选择稳定性、预报精度等最优的模型。

CSR 的计算量较大。为了提高计算速度, 本文采用一种快速的稳健算法^[6]。限于篇幅, 算法的具体

步骤不再赘述。

3 运用 RBFN-CSR 方法建立氨含量的预测模型

3.1 预测模型的建立

氨合成是复杂的非均相反应过程。本文以文献[7]的实验数据为样本, 将氨合成反应的反应温度、反应压力、空速和进入反应器的 H_2, N_2, CH_4 的含量共 6 个因素作为自变量, 氨合成反应器出口氨含量为因变量, 建立氨含量的预测模型。其主要建模步骤如下:

1) 将训练样本数据作归一化处理;

2) 将 RBFN 的隐结点与各个训练样本一一对应, 每个隐结点径向基函数的中心矢量 c_h 取相应样本的值, 宽度参数 σ_h 的选取详见下节;

3) 计算各训练样本与每个隐结点径向基函数中心矢量的距离;

4) 根据式(1)计算得到各隐结点的输出, 从而得到活化矩阵 G ;

5) 建立如同式(3)的回归算式, 运用 CSR 方法选取最优的回归模型。

3.2 预测模型的检验

为了检验模型的稳定性和预测精度, 本文采用交叉验证的方法, 依次从 24 组样品数据中取出 23 组作为训练样本集, 余下 1 组作测试用。模型的自检相对误差和预测相对误差分别记为

$$SEr(x_i, l, j) = \left| \frac{[\hat{y}_i^l(x_i) - y_i]}{y_i} \right| \quad (4)$$

$$PEr(x_i, l, j) = \left| \frac{[\hat{y}_i^l(x_i) - y_i]}{y_i} \right| \quad (5)$$

其中: x_i 为训练样本, x_i 为预测样本。

由于采用交叉验证法, 对每一组 l, j 可有 24 个模型, 计算所有 $SEr(x_i, l, j)$ 的均值, 记为 $A SEr(l, j)$, 用以反映模型的拟合精度; 再计算所有 $PEr(x_i, l, j)$ 的均值和标准差, 分别记为 $A PEr(l, j)$ 和 $S PEr(l, j)$, 用以反映模型的预测精度和稳定性。 l, j 的取值分组共有 $(23^2 + 23)/2$ 次, 检验结果见表 1 和表 2。限于篇幅, 其中只列出部分数据。

3.3 结果与讨论

3.3.1 自检误差和预测误差的趋势分析

随着样本信息逐步提取进入模型, 模型的拟合精度将不断提高, $A SEr(l, j)$ 的值随着 l, j 的增大而单调下降。但是, $A PEr(l, j)$ 与 $S PEr(l, j)$ 并非只随 l, j 的增大而单调下降。在 l, j 的二维区间内, 存在一个二者都趋于最小的区域, 已在表 1 和表 2 中用黑线框出。这说明当 l, j 增加至相当大后, 将从样本数据中提取过多的成分, 出现复共线性, 导致模型的不

稳定性增大, 预测精度下降。因此在选择最优模型时, 可从表 1 和表 2 的黑线框区域内选定 l, j 值。此时, 模型的预测精度高, 稳定性好, 较为理想。

3.3.2 隐结点宽度参数 σ_h 的选取

隐结点宽度参数 σ_h 的选取将影响模型的预测精度和最佳 l, j 值的选择, 本文采用尝试的方法来选取 σ_h 。具体做法是: 假设第 h 个隐结点径向基函数

中心矢量 c_h 与各训练样本距离的平均值为 d_h , 则令 $\sigma_h = \mu d_h$, 通过调节系数 μ 来寻找最优的 σ_h 。

宽度参数对模型预测精度的影响如表 3 所示。从表 3 可以看出, 取不同的系数 μ 对预测结果的影响较明显, 当 $\mu = 0.92$ 时, 预测相对误差的均值最小。表 1 和表 2 即为这种取值情况下的结果。

表 1 预测相对误差的均值 $APE_r(l, j)$

	l													j
	1	3	5	7	9	11	13	15	17	19	21	22	23	
	0.233 0	0.228 0	0.237 4	0.261 0	0.256 9	0.256 0	0.255 3	0.256 0	0.256 3	0.255 6	0.255 8	0.255 8	0.255 5	1
		0.181 2	0.160 5	0.146 9	0.145 8	0.144 5	0.144 7	0.144 9	0.144 8	0.144 8	0.143 8	0.143 1	0.143 1	3
1	0.305 2		0.113 3	0.073 4	0.064 2	0.063 0	0.063 2	0.063 2	0.063 1	0.062 2	0.061 4	0.061 1	0.060 7	5
3	0.289 0	0.229 9		0.055 4	0.048 3	0.048 9	0.049 5	0.049 6	0.049 4	0.049 2	0.048 5	0.048 8	0.048 8	7
5	0.321 8	0.202 8	0.139 1		0.042 2	0.043 7	0.043 5	0.043 9	0.043 6	0.042 3	0.045 2	0.046 0	0.046 0	9
7	0.333 2	0.190 1	0.105 5	0.074 6		0.050 6	0.047 7	0.047 9	0.047 4	0.045 1	0.043 5	0.046 2	0.047 3	11
9	0.327 0	0.184 9	0.081 7	0.063 0	0.056 7		0.041 4	0.040 4	0.038 9	0.037 9	0.039 3	0.040 2	0.040 6	13
11	0.324 6	0.182 1	0.079 4	0.063 7	0.056 8	0.070 3		0.033 8	0.039 4	0.034 0	0.033 9	0.033 8	0.033 5	15
13	0.324 5	0.182 4	0.079 7	0.064 1	0.057 2	0.065 2	0.054 9		0.043 3	0.054 9	0.065 7	0.066 2	0.069 2	17
15	0.324 6	0.182 6	0.079 9	0.064 2	0.057 0	0.065 7	0.053 9	0.044 6		0.089 0	0.138 7	0.132 5	0.131 0	19
17	0.324 9	0.182 3	0.079 8	0.063 8	0.057 2	0.064 8	0.052 5	0.052 0	0.054 5		0.150 7	0.170 3	0.164 5	21
19	0.323 6	0.181 7	0.078 4	0.063 6	0.054 6	0.061 6	0.051 4	0.044 6	0.077 3	0.133 9		0.191 5	0.173 2	22
21	0.323 1	0.180 4	0.077 7	0.063 5	0.059 3	0.057 3	0.051 3	0.044 9	0.099 7	0.308 4	0.323 8		0.189 6	23
22	0.323 0	0.179 6	0.077 4	0.063 2	0.060 0	0.059 4	0.051 1	0.045 1	0.099 1	0.314 2	0.349 8	0.396 0		
23	0.322 8	0.179 3	0.077 1	0.063 2	0.060 1	0.061 1	0.051 1	0.044 8	0.107 2	0.310 8	0.361 4	0.387 2	0.410 1	

表 2 预测相对误差的标准差 $SPE_r(l, j)$

表 3 宽度参数对模型预测精度的影响

宽度参数的调节系数 μ	0.5	0.6	0.7	0.8	0.92	1	1.1	1.2
最小预测相对误差均值	4.77	3.83	3.52	3.66	3.35	4.00	4.49	5.22
最佳 (l, j) 取值	(17, 16)	(15, 8)	(10, 9)	(10, 9)	(23, 15)	(12, 12)	(21, 11)	(21, 11)

表 4 本文预测模型与文献[7]模型计算结果的比较

序号	NH ₃ 实验测定值	文献[7]模型自检值	本文模型自检值	本文模型预测值	文献[7]模型自检相对误差/%	本文模型自检相对误差/%	本文模型预测相对误差/%
1	0.065 0	0.065 8	0.065 3	0.064 9	- 1.23	- 0.54	0.08
2	0.056 7	0.052 4	0.056 1	0.056 6	7.58	1.00	0.26
3	0.078 5	0.082 3	0.077 2	0.076 3	- 4.84	1.64	2.86
4	0.061 4	0.063 8	0.063 6	0.064 8	- 3.91	- 3.62	- 5.53
5	0.090 7	0.094 8	0.091 1	0.092 1	- 4.52	- 0.50	- 1.50
6	0.082 1	0.077 2	0.080 2	0.078 5	5.97	2.29	4.39
7	0.106 8	0.112 3	0.108 6	0.110 2	- 5.15	- 1.64	- 3.20
8	0.095 9	0.090 9	0.094 5	0.093 8	5.21	1.43	2.21
9	0.120 0	0.123 8	0.119 5	0.118 9	- 3.17	0.45	0.95
10	0.103 9	0.101 7	0.105 5	0.107 1	2.12	- 1.56	- 3.08

续表4

11	0.1325	0.1334	0.1335	0.1340	-0.068	-0.073	-1.11
12	0.1150	0.1132	0.1134	0.1131	1.57	1.37	1.69
13	0.1252	0.1266	0.1226	0.1203	-1.12	2.10	3.90
14	0.1075	0.1155	0.1098	0.1117	-7.44	-2.10	-3.87
15	0.1141	0.1118	0.1143	0.1142	2.02	-0.21	-0.09
16	0.1039	0.1084	0.1038	0.1045	-4.33	0.06	-0.54
17	0.0932	0.0932	0.0941	0.0987	0	-0.98	-5.91
18	0.0907	0.0891	0.0899	0.0791	1.76	0.94	12.83
19	0.1341	0.1338	0.1341	0.1416	0.22	0	-5.59
20	0.1431	0.1389	0.1431	0.1340	2.94	-0.01	6.34
21	0.0889	0.0878	0.0889	0.0863	1.24	0	2.89
22	0.1066	0.1073	0.1066	0.1088	-0.66	0.03	-2.09
23	0.0772	0.0779	0.0772	0.0839	-0.91	-0.04	-8.73
24	0.0653	0.0663	0.0653	0.0648	-1.53	0.02	0.71
平均值					2.92	0.97	3.35

3.3.3 与文献[7]结果的比较

由以上讨论得出,当 $\mu = 0.92, l = 23, j = 15$ 时,预测模型为最优,其自检结果和预测结果列于表4。文献[7]根据氨合成反应的机理假设,导出动力学模型,并且结合实验数据求得模型参数。该文献只给出了模型的自检结果,误差为平均自检相对误差,但并未作出预测。为便于比较,本文将其结果一并列于表4。

从表4可以看出,本文运用RBFN-CSR方法所建的模型,平均自检相对误差比文献[7]小很多,预测相对误差除个别点外也都很小。由此可见,本文所建立的模型是一种更优的氨含量预测模型。

4 结 论

本文将RBFN-CSR方法用于建立氨合成反应器出口氨含量的预测模型,通过验证和比较可以看到,所建模型具有明显的优点。该模型对合成氨生产具有指导意义,也可为反应器的进一步优化提供借鉴。

参考文献(References):

- [1] 于遵宏,朱炳辰,沈才大.大型合成氨厂工艺过程分析[M].北京:中国石化出版社,1993
- [2] 梅安华,汪寿建,林棣生.小合成氨厂工艺技术与设计手册[M].北京:化学工业出版社,1996

- [3] Walczak B, Massart D L. The radial basis functions - Partial least squares approach as a flexible non-linear regression technique[J]. *Analytica Chimica Acta*, 1996, 331(3): 177-185
- [4] Kalivas J H. *Interrelationships between PCR and PLS by Cyclic Subspace Regression with Applications: New Trends in Chemometrics* [M]. Changsha: Hunan Univ Press, 1997.
- [5] Lang P M, Brencheley J M, Nieves R G, et al. Cyclic subspace regression [J]. *J of Multivariate Analysis*, 1998, 65: 58-70
- [6] 庄凌,陈德钊,陈亚秋,等.循环子空间回归的一种快速算法及其在定量构效关系中的应用[J]. *分析化学*, 1999, 27(12): 1386-1390
(Zhuang Ling, Chen Dezha, Chen Yaqiu, et al. A rapid algorithm of cyclic subspace regression and its application to quantitative structure-activity relationships [J]. *Chinese J of Analytical Chemistry*, 1999, 27(12): 1386-1390)
- [7] 李涛,徐懋生,朱继承,等. A301氨合成催化剂本征动力学[J]. *华东理工大学学报*, 2001, 27(3): 221-225
(Li Tao, Xu Maosheng, Zhu Jicheng, et al. Intrinsic kinetics of A301 ammonia synthesis catalyst [J]. *J of East China Univ of Science & Technology*, 2001, 27(3): 221-225)