

文章编号: 1001-0920(2009)04-0632-05

## 钴湿法冶炼萃取过程中的组分含量软测量

贾润达<sup>1a</sup>, 毛志忠<sup>1a,1b</sup>, 常玉清<sup>1a,1b</sup>, 周俊武<sup>2</sup>

(1. 东北大学 a. 信息科学与工程学院, b. 教育部暨辽宁省流程工业综合自动化重点实验室, 沈阳 110004; 2. 北京矿冶研究总院 信息技术与自动化研究设计所, 北京 100044)

**摘要:** 提出了一种钴湿法冶炼萃取组分含量混合建模方法. 该模型由基于物料衡算关系的动态机理模型与基于萃取平衡实验数据的 RBF 神经网络模型组成. 机理模型作为描述过程动态行为的整体框架, RBF 神经网络用来辨识机理模型中的未知函数关系. 在上述混合模型的基础上, 还提出了一种模型校正策略, 进一步提高了模型的精确性. 将所建立的混合模型应用于实际湿法冶炼生产过程中, 结果表明该方法具有良好的估计性能.

**关键词:** 湿法冶炼; 萃取; 混合模型; RBF 神经网络; 软测量

**中图分类号:** TP273 **文献标识码:** A

## Soft sensing for component content in cobalt hydrometallurgy extraction process

JIA Run-da<sup>1a</sup>, MAO Zhi-zhong<sup>1a,1b</sup>, CHANG Yu-qing<sup>1a,1b</sup>, ZHOU Jun-wu<sup>2</sup>

(1a. College of Information Science and Engineering, 1b. Key Laboratory of Process Industry Automation of Ministry of Education, Northeastern University, Shenyang 110004, China; 2. Sub-institute for IT and Automation, Beijing General Research Institute of Mining and Metallurgy, Beijing 100044, China. Correspondent: JIA Run-da, E-mail: jiarunda@yahoo.com.cn)

**Abstract:** A hybrid modeling scheme is presented in this paper for component content in cobalt hydrometallurgy extraction process, which is composed of first principle model based on material balance and RBF neural networks models based on the data of extraction balance experiment. First principle model describes dynamic behavior of process as the rough framework. RBF neural networks are employed to identify the unknown function relationship. Based on the hybrid model above, a model correction strategy is also proposed to make the model more accuracy. Applying the hybrid model to practical industrial process of hydrometallurgy, the results show that the method has satisfactory estimation performance.

**Key words:** Hydrometallurgy; Extraction; Hybrid model; RBF neural networks; Soft sensor

### 1 引言

浸出、萃取、合成是钴湿法冶炼的重要组成部分. 萃取的目的是除去浸出液中的其他金属杂质, 为合成提供高纯度的钴溶液. 在线检测萃取过程中各种金属离子的浓度对于生产过程的自动控制具有十分重要的意义. 然而现有的在线检测仪器, 普遍存在投资大、连续运行可靠性差、精度不高等缺点<sup>[1]</sup>, 难以应用于实际生产过程. 因此操作工只能根据离线分析值, 凭经验对萃取过程进行控制, 产品的纯度与收率都很难保证.

软测量是一种用于估计生产过程中难以检测变

量的技术. 通过选择一些容易测量的辅助变量, 构成某种数学关系来推断和估计难以测量或暂时不能测量的重要变量. 软测量模型建立的方法较多, 而混合模型在充分考虑过程物理特性的同时, 也利用了相关的数据信息, 因此目前被广泛采用. 文献[1]中虽然提出了一种萃取过程混合模型, 但该模型本质上是静态模型, 不能反映萃取过程的动态特性. 针对这些问题, 本文首先通过分析混合澄清器的机理, 利用物料衡算关系, 建立了分馏萃取过程组分含量的动态机理模型; 然后利用离线萃取平衡实验获得的样本数据, 并采用 RBF 神经网络对机理模型中的未知

收稿日期: 2008-04-02; 修回日期: 2008-08-12.

基金项目: 国家 863 计划项目(2006AA060201).

作者简介: 贾润达(1981—), 男, 山东莒南人, 博士生, 从事复杂工业过程的建模与控制的研究; 毛志忠(1961—), 男, 山东莱州人, 教授, 博士生导师, 从事复杂控制系统设计与优化、智能控制等研究.

函数关系进行辨识;通过模型校正进一步提高了模型的精确性,并将该方法应用于实际生产过程中,取得了满意的效果。

## 2 过程描述

萃取的目的是除去料液中的有害金属杂质,得到纯净的钴溶液。通常这一过程由几个子萃取过程共同完成。在不同的子萃取过程,选用不同的有机试剂,除去相应的金属杂质。虽然各个子萃取过程除去的金属杂质不同,但其基本原理以及工艺流程却大致相同。因此本文就以钴湿法冶炼中萃取除铜过程为例进行研究。

为了除去料液中含有较高的杂质铜,通常采用分馏萃取的方式。它由以下 3 段组成:萃取段、洗涤段和反萃段,而每一段又可能包含几个级。在萃取段,由于铜钴性质上的差别,使得较多的铜和一部分钴同时进入有机相;在洗涤段,控制一定的洗涤条件,可以使洗下的钴远多于铜;在反萃段,铜重新返回水相,使有机相得以再生,循环使用。

萃取设备多种多样,而混合澄清器以其低成本、低能耗、高效率的优点,被湿法冶炼过程广泛采用。混合澄清器由许多级组成,而每一级又由混合室和澄清室组成。铜的传质过程在混合室内发生;澄清室完成水相与有机相的分离。图 1 所示为铜萃取混合澄清器的等效结构图,该设备有 5 级,其中前两级用于萃取,中间一级用于洗涤,而后两级用于反萃。在萃取段的混合室内,由于搅拌桨的搅拌作用,水相与有机相充分混合,与此同时铜离子从水相进入有机相,而钴离子仍然留在水相;在萃取段的澄清室内,由于水相与有机相在密度上的差别,使得有机相浮于水相之上,此时通过分离水相与有机相即可达到铜钴分离的目的。而在洗涤段与反萃段,上述过程刚好相反。

设备的可控流量有:有机相、料液、洗涤液以及反萃剂的流量。这其中有机相在整个设备中循环流动,通过有机相储罐对其实施控制,通过调节有机相

的流量来控制萃余液中铜离子的浓度。除了上述可控流量外,料液、洗涤液、反萃剂以及萃余液的 pH 值同样可以在线检测,而萃余液中铜离子的浓度只能通过离线分析的方式取得。

## 3 建模方法

### 3.1 动态机理模型的建立

图 1 中  $x_i$  和  $y_i$  分别代表从第  $i$  级混合器流出的水相和有机相中铜离子的浓度; $t_i$  代表水相和有机相在第  $i$  级澄清器内的滞留时间,依据混合澄清器设备参数, $t_i (i = 1, \dots, 5)$  取为 2 小时; $y_0$  代表再生有机相中铜离子的浓度; $x_m, x_w$  和  $x_s$  分别代表原料液、洗涤液和反萃剂中铜离子的浓度。

为了建立萃取过程的动态机理模型,还需要对萃取过程进行如下假设<sup>[2]</sup>:

假设 1 传质只在混合室内进行,澄清室内无传质。

假设 2 有机相与水相在整个萃取过程中体积保持不变。

这样的假设保证在混合器内有机相和水相充分接触,铜离子从有机相进入水相;而在澄清器内只进行有机相和水相的分离,即相当于一个纯滞后环节<sup>[3]</sup>。

依据物料衡算关系,对萃取段的 2 个级可以列写如下动态平衡方程:

$$\frac{dx_1(t)}{dt} = \frac{F_{x,w}(t) + F_{x,m}(t)}{V_{x,1}(t)} [x_2(t - t_2) - x_1(t)] - K_1 [x_1(t) - x_1^*(t)], \quad (1)$$

$$\frac{dy_1(t)}{dt} = \frac{F_y(t)}{V_{y,1}(t)} [y_0(t) - y_1(t)] + K_1 [x_1(t) - x_1^*(t)], \quad (2)$$

$$x_1^*(t) = f_e(x_2(t - t_2), y_0(t), \frac{F_y(t)}{F_{x,w}(t) + F_{x,m}(t)}, p_e(t)), \quad (3)$$

$$\frac{dx_2(t)}{dt} = \frac{F_{x,w}(t)}{V_{x,2}(t)} [x_3(t - t_3) - x_2(t)] +$$

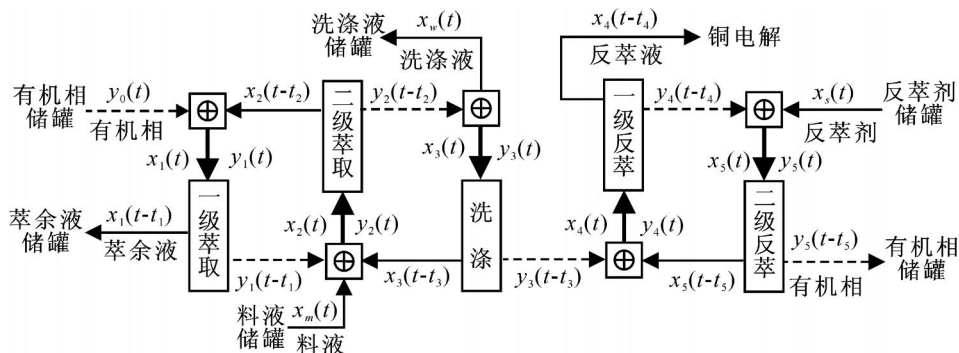


图 1 混合澄清器等效结构图

$$\frac{F_{x,m}(t)}{V_{x,2}(t)} [x_m(t) - x_2(t)] - K_2 [x_2(t) - x_2^*(t)], \quad (4)$$

$$\frac{dy_2(t)}{dt} = \frac{F_y(t)}{V_{y,2}(t)} [y_1(t-t_1) - y_2(t)] + K_2 [x_2(t) - x_2^*(t)], \quad (5)$$

$$x_2^*(t) = f_e\left(\frac{F_{x,w}(t)x_3(t-t_3) + F_{x,m}(t)x_m(t)}{F_{x,w}(t) + F_{x,m}(t)}, y_1(t-t_1), \frac{F_y(t)}{F_{x,m}(t) + F_{x,w}(t)}, p_e(t)\right). \quad (6)$$

同理,对洗涤段的1个级可以列写如下动态平衡方程:

$$\frac{dx_3(t)}{dt} = \frac{F_{x,w}(t)}{V_{x,3}(t)} [x_w(t) - x_3(t)] + K_3 [x_3(t) - x_3^*(t)], \quad (7)$$

$$\frac{dy_3(t)}{dt} = \frac{F_y(t)}{V_{y,3}(t)} [y_2(t-t_2) - y_3(t)] - K_3 [x_3(t) - x_3^*(t)], \quad (8)$$

$$x_3^*(t) = f_w(x_w(t), y_2(t-t_2), \frac{F_y(t)}{F_{x,w}(t)}). \quad (9)$$

而对于反萃段的2个级也可以列写如下动态平衡方程:

$$\frac{dx_4(t)}{dt} = \frac{F_{x,s}(t)}{V_{x,4}(t)} [x_s(t-t_5) - x_4(t)] + K_4 [x_4(t) - x_4^*(t)], \quad (10)$$

$$\frac{dy_4(t)}{dt} = \frac{F_y(t)}{V_{y,4}(t)} [y_3(t-t_3) - y_4(t)] - K_4 [x_4(t) - x_4^*(t)], \quad (11)$$

$$x_4^*(t) = f_s(x_s(t-t_5), y_3(t-t_3), \frac{F_y(t)}{F_{x,s}(t)}), \quad (12)$$

$$\frac{dx_5(t)}{dt} = \frac{F_{x,s}(t)}{V_{x,5}(t)} [x_s(t) - x_5(t)] + K_5 [x_5(t) - x_5^*(t)], \quad (13)$$

$$\frac{dy_5(t)}{dt} = \frac{F_y(t)}{V_{y,5}(t)} [y_4(t-t_4) - y_5(t)] - K_5 [x_5(t) - x_5^*(t)], \quad (14)$$

$$x_5^*(t) = f_s(x_s(t), y_4(t-t_4), \frac{F_y(t)}{F_{x,s}(t)}). \quad (15)$$

其中:  $F_{x,m}$ ,  $F_{x,w}$  和  $F_{x,s}$  分别代表料液的流量、洗涤液的流量和反萃剂的流量,  $F_y$  代表有机相的流量, 均可在线检测;  $V_{x,i}$  和  $V_{y,i}$  分别代表滞留在第  $i$  级混合器内水相和有机相的体积, 可以通过有机储罐的液位以及流比进行计算;  $K_i$  代表第  $i$  级的传质系数, 它与搅拌转速有关, 而当搅拌转速大于某一定值时为常数<sup>[3]</sup>, 根据所选用的铜萃取剂本文确定传质系数  $K_i = 30\text{s}^{-1}$ .  $x_i - x_i^*$  代表传质推动力, 其中  $x_i^*$  为

理想情况下第  $i$  级达到平衡时水相中铜离子的浓度. 在萃取段, 它与流入混合器的水相和有机相中的铜离子浓度、相比(流比) 以及萃余液的 pH 值  $p_e$  有关, 它们之间的复杂非线性关系可以利用  $f_e(\cdot)$  进行描述; 在洗涤段和反萃段, 它与流入混合器的水相和有机相中的铜离子浓度、相比(流比) 有关, 它们之间的复杂非线性关系分别用  $f_w(\cdot)$  和  $f_s(\cdot)$  进行描述.

### 3.2 混合建模方法

混合模型的结构如图2所示. 该模型以物料衡算方程作为先验机理模型, 用它来描述萃取过程的整体特性. 由于萃取段、洗涤段和反萃段所采用的试剂以及条件不同, 分别采用3个不同的RBF神经网络RBF1, RBF2和RBF3去拟合各段的未知非线性函数关系  $f_e(\cdot)$ ,  $f_w(\cdot)$  和  $f_s(\cdot)$ . 神经网络与先验机理模型串联对萃取过程中铜离子的浓度进行估计.

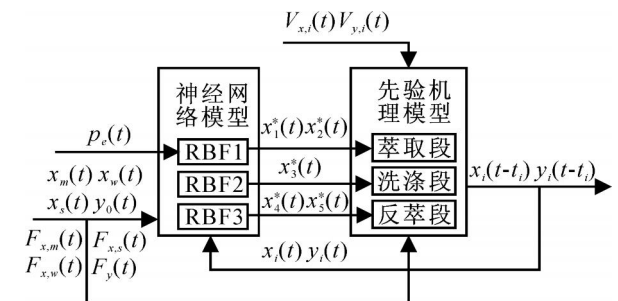


图2 混合模型结构

该模型的输入有料液、洗涤液、反萃剂以及新鲜有机相中铜离子的浓度, 料液、洗涤液、反萃剂以及有机相的流量、萃余液的 pH 值. 模型的输出是萃余液以及萃取液中铜离子的浓度.

## 4 萃取平衡实验与RBF网络的设计

### 4.1 萃取平衡实验

为了建立理想情况下平衡时水相中铜离子的浓度与各个影响因素之间的未知函数关系, 需要进行离线萃取平衡实验以获取用于辨识的样本数据. 首先从有机相储罐中取出少量新鲜的有机相用于萃取段平衡实验, 分别配制具有不同铜离子浓度的有机相与水相, 用分液漏斗进行萃取平衡实验. 有机相和水相按一定的相比加入分液漏斗, 振荡混合一定时间静置分相, 调节平衡后的水相 pH 值, 分析水相金属离子浓度<sup>[4]</sup>, 记录用于辨识的实验数据.

而对应洗涤段与反萃段的实验过程大致相同, 但需要从洗涤液储罐和反萃剂储罐中取出少量的洗涤液和反萃剂作为水相用于实验. 由于洗涤液与反萃剂的 pH 值一定, 无需调节平衡时的 pH 值.

### 4.2 RBF网络的设计

在获得上述3组实验数据以后, 就可以分别利

用 3 个不同的 RBF 神经网络对  $f_c(\cdot)$ ,  $f_w(\cdot)$  和  $f_s(\cdot)$  进行拟合. 3 个神经网络在结构上基本相似, 只是萃取段相比于洗涤段和反萃段多了一个输入, 即萃余液的 pH 值, 因此本文就以萃取段的 RBF 神经网络 RBF1 为例介绍神经网络的设计过程.

在萃取段第 1 级(第 2 级与之类似), 网络的输入分别是混合前水相中铜离子的浓度  $x_2(t - t_2)$  和有机相中铜离子的浓度  $y_0(t)$ , 流比(相比)  $F_y(t) / (F_{x,w}(t) + F_{x,m}(t))$ , 以及萃余液的 pH 值  $p_c(t)$ . 网络的输出是理想情况下平衡时水相中铜离子的浓度  $x_1^*(t)$ . 若隐含层节点个数为  $n$ , 那么 RBF1 的网络结构如图 3 所示.

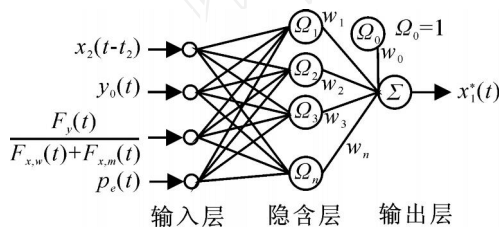


图 3 RBF1 的网络结构

网络的输出可表示为

$$x_1^*(t) = w_0 + \sum_{j=1}^n w_j \cdot j(Z(t) - C_j). \quad (16)$$

其中

$$Z(t) = [x_2(t - t_2), y_0(t), F_y(t) / F_{x,w}(t) + F_{x,m}(t), p_c(t)]^T, \quad (17)$$

$w_j$  为隐含层与输出层之间的连接权值;  $\cdot j(\cdot)$  为一种距离的测度;  $j(\cdot)$  为径向基函数, 本文选为高斯函数;  $C_j$  为隐含层节点的中心, 其中隐含了宽度参数  $\sigma_j (j = 1, 2, \dots, n)$ . 考虑式(3)与(16)的等价关系, 可以利用 RBF1 来代替未知函数关系  $f_c(\cdot)$ .

通过萃取平衡实验得到  $n = 12$  组样本数据, 用于上述神经网络的训练. 训练的目的在于获取隐含层节点的中心和隐含层与输出层之间的连接权值. 本文选用 PLS 法<sup>[5]</sup>作为 RBF 网络的训练算法, 在表 1 中列出了其与 OLS 法<sup>[6]</sup>和  $k$ -mean 聚类法<sup>[7]</sup>的均方根误差(RMSE)比较. 该方法的步骤简述如下:

- Step1: 将训练样本作归一化处理;
- Step2: 将 RBF 网络的隐含层节点的中心与训练样本一一对应;
- Step3: 计算训练样本与隐含层节点中心的距离;
- Step4: 根据经验, 选取合适的宽度参数;
- Step5: 计算活化矩阵;
- Step6: 建立回归模型, 应用 PLSR 求解<sup>[8]</sup>, 得到网络权值.

表 1 各类 RBF 训练算法的 RMSE 比较

	OLS <sup>[5]</sup>	k-mean <sup>[6]</sup>	PLS <sup>[7]</sup>
RBF1( $f_c(\cdot)$ )	0.0501	0.1430	0.0145
RBF2( $f_w(\cdot)$ )	0.0845	0.1221	0.0110
RBF3( $f_s(\cdot)$ )	0.0762	0.1136	0.0095

## 5 模型校正与软测量应用

### 5.1 模型校正

为了使所建立的混合模型能够更加精确地描述萃取过程, 在实际应用中采用离线校正的方法对混合模型进行校正. 当设备运行一段时间后, 由于稀释剂挥发等因素的影响, 导致有机相性质改变, 此时如仍然沿用原先的神经网络模型, 混合模型的预测精度不免随着时间的推移而有所下降. 因此此时需要重新从有机储罐中取样, 进行萃取平衡实验, 以更新神经网络模型.

### 5.2 钴湿法冶炼萃取过程铜离子浓度软测量

利用 Matlab/ Simulink 构建上述混合模型, 模型中的流量值、pH 值以及液位可以在线检测, 每隔 10 分钟进行一次采样; 而浓度值仅能通过离线分析取得, 每 8 小时进行一次离线化验. 当上述模型运行 15 天后, 重新取样进行萃取平衡实验, 对相应的神经网络模型进行更新.

将训练好的混合模型应用到钴湿法冶炼萃取除铜过程中, 并与一个月的现场数据进行比较, 利用前述的模型校正策略对模型进行离线校正. 由图 4 可见, 混合模型能够较好地描述萃取过程中组分含量的变化趋势. 图中还绘制了未经过校正的模型输出, 并将它们的预测均方根误差(RMSE)以及最大绝对误差(MAE)列于表 2 中进行比较, 可以看出经过校正后的模型精度有所提高.

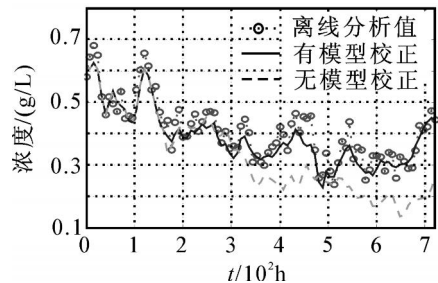


图 4 混合模型验证曲线

表 2 有无模型校正的 RMSE 与 MAE 比较

	有模型校正	无模型校正
RMSE	0.0192	0.0541
MAE	0.0467	0.1236

## 6 结 论

本文提出了一种钴湿法冶炼萃取过程组分含量混合建模方法. 该模型由描述萃取动态过程的机理模型与描述未知函数关系的 RBF 神经网络串联组

合而成. 这种串联混合机构不但体现了过程的机理, 而且很好地解决了模型中未知函数关系的确定问题, 大大提高了模型的实用性. 该方法同样适用于其他有色金属湿法冶炼的萃取除杂过程, 并为萃取过程自动控制的实施奠定了基础. 另外, 本文还提出了一种离线模型校正策略, 使该模型能够更加精确地描述萃取过程.

### 参考文献(References)

- [1] 杨辉, 谭明皓, 柴天佑. 基于神经网络的多元稀土萃取组分含量的软测量[J]. 中国稀土学报, 2003, 21(4): 425-430.  
(Yang H, Tan M H, Chai T Y. Neural networks based component content soft-sensor in countercurrent rare-earth extraction [J]. J of the Chinese Rare Earth Society, 2003, 21(4): 425-430.)
- [2] Wichterlova J, Rod J. Dynamic behaviour of the mixer-settler cascade: Extractive separation of rare earths[J]. Chemical Engineering Science, 1999, 54(18): 4041-4051.
- [3] Komulainen T, Pekkala P, Rantala A, et al. Dynamic modelling of an industrial copper solvent extraction process[J]. Hydrometallurgy, 2006, 81(1): 52-61.
- [4] Giles A E, Aldrich C, Deventer J S J. Modelling of rare earth solvent extraction with artificial neural nets[J]. Hydrometallurgy, 1996, 43(1): 241-255.
- [5] Walczak B, Massart D L. The radial basis function-partial least squares approach as a flexible non-linear regression technique [J]. Analytical Chimica Acta, 1996, 331(3): 177-185.
- [6] Gao Q, Yan W W, Shao H H. Regularized RBF network based inferential sensor and its application in product quality prediction [J]. Acta Simulata Systematica Sinica, 2005, 17(7): 1609-1612.
- [7] Chen S, Cowan F N, Grant P M. Orthogonal least squares learning algorithm for radial basis function networks[J]. IEEE Trans Neural Networks, 1991, 2(2): 302-309.
- [8] Wold S, Sjöström M, Eriksson L. PLS-regression: A basic tool of chemometrics [J]. Chemometrics and Intelligent Laboratory System, 2001, 58(2): 109-119.
- [9] Ghosh M K, Arapostathis A, Marcus S I. Ergodic control of switching diffusions [J]. SIAM J Control Optimization, 1997, 35(6): 1952-1988.
- [10] Ye H, Michel A N, Hou L. Stability analysis of systems with impulse effects [J]. IEEE Trans on Automatic Control, 1998, 43(12): 1719-1723.
- [11] Xie G, Wang L. Necessary and sufficient conditions for controllability and observability of switched impulsive control systems [J]. IEEE Trans on Automatic Control, 2004, 49(6): 960-966.
- [12] Gao L J, Wu Y Q. Exponential stability of impulsive jump linear systems with Markov process [J]. J of Systems Engineering and Electronics, 2007, 18(2): 304-310.
- [13] Wu H J, Sun J T. P-mment stability of stochastic differential equations with impulsive jump and Markovian switching[J]. Automatica, 2006, 42(10): 1753-1759.
- [14] Kozin F. A survey of stability of stochastic systems [J]. Automatica, 1969, 5(1): 95-112.
- [15] Skorohod A V. Asymptotic methods in the theory of stochastic differential equations [M]. Providence RI: American Mathematical Society, 2004.
- [16] Lipster R S, Shiriyayev A N. Theory of martingales [M]. Chichester: Horwood, 1989.
- [17] Mao X, Yin G G, Yuan C. Stabilization and destabilization of hybrid systems of stochastic differential equations [J]. Automatica, 2007, 43(2): 264-273.
- [18] Boukas E K, Liu Z K. Robust control of discrete-time Markovian jump linear system with mode-dependent time-delays [J]. IEEE Trans on Automatic Control, 2001, 46(12): 1918-1924.
- [19] Wang Z, Qian H, Burnham K J. On stabilization of bilinear uncertain time-delay stochastic systems with Markovian jumping parameters [J]. IEEE Trans on Automatic Control, 2002, 47(4): 640-646.
- [20] Boyd S, El Ghaoui L, Feron E, et al. Linear matrix inequalities in systems and control theory [M]. Philadelphia: SIAM, 1994.

(上接第 631 页)