

# RBF-LVLS 方法用于甲醇合成反应器的软测量建模

成 忠<sup>a</sup>, 诸爱士<sup>a</sup>, 程志刚<sup>b</sup>

(浙江科技学院 a. 生物与化学工程学院; b. 信息与电子工程学院, 杭州 310023)

**摘 要:** 及时、准确地测定化工过程变量,对确保生产过程稳定、有效控制产品质量具有重要意义。RBF-LVLS 是在分析 RBF-PLS 的基础上提出的新方法,它保留了 RBF-PLS 的优点,采用非线性的神经网络结构,又用数学方法直接求解,免去了 ANN 冗长的训练过程和其他诸多欠缺,同时,它所集成的 LVLS 方法将 PLS 的多个目标函数整合为因变量成分拟合误差一个,以此循环迭代求解自变量和因变量的成分及它们间的回归系数,从而使建立的模型既具有很高的预报精度和良好的稳定性,又有简洁的解析形式,便于优化等进一步的计算和处理。RBF-LVLS 方法成功应用于甲醇合成反应器的软测量建模。

**关键词:** 径向基函数;非线性建模;偏最小二乘回归;化工过程建模;软测量;甲醇合成反应器

中图分类号: TQ 021.8

文献标识码: A

文章编号: 1671-8798(2006)02-0094-05

## RBF-LVLS Approach and its Application to Methanol Soft Sensor Modeling of Synthesis Reactor

CHENG Zhong<sup>a</sup>, ZHU Ai-shi<sup>a</sup>, CHENG Zhi-gang<sup>b</sup>

(a. School of Biological and Chemical Engineering; b. School of Information and Electronic Engineering,  
Zhejiang University of Science and Technology, Hangzhou 310023, China)

**Abstract:** It was well known that to measure and estimate the chemical process variables in time had vital significance in ensuring process stabilization and effectively controlling its product quality. In this study, the RBF-LVLS approach was proposed by analyzing the RBF-PLS method. The approach had the merit of RBF-PLS, i. e. using a structure similar to that of neural network, getting solution by mathematical methods directly, without the tedious training process of neural network and other evoking shortcomings. At the same time, the embedded latent variable least squares (LVLS) algorithm in the RBF-LVLS regression framework converted several objective functions into a function of the response variable fitting errors, and the PLS components and their regression coefficients between each pair of them were calculated based on this function. Thus, the RBF-LVLS could improve the accuracy and stability of predicted value of model. Moreover, the models had a brief analysis formula that was convenient for further processing such as optimiza-

收稿日期: 2006-03-13

基金项目: 浙江科技学院科研基金资助项目(QF200501)

作者简介: 成 忠(1973—),男,江苏盐城人,讲师,博士,主要从事化工系统工程研究。

tion. Finally, it was successfully applied to soft sensor modeling of the methanol synthesis reactor.

**Key words:** radial basis function; on-linear modeling; partial least square regression; chemical process modeling; soft sensor; methanol synthesis reactor

甲醇是重要的化工原料,广泛用于有机合成染料、医药、涂料和国防工业。影响甲醇合成反应的因素众多,相互关系复杂<sup>[1-3]</sup>,而其中的甲醇生产装置中的甲醇合成工序在甲醇生产中处于一个核心地位。根据实际生产情况,搜寻现有甲醇合成反应操作最优点,实现优化生产,可以获取巨大的经济效益。而优化的基础在于建立优良的模型,采用适宜的方法则是建模成功的关键<sup>[4]</sup>。

线性回归模型如式(1)所示:

$$Y = XB + E \quad (1)$$

式(1)中: $X$ 为 $k \times p$ 维自变量阵, $Y$ 为 $k \times q$ 维因变量阵, $E$ 为 $k \times p$ 维因变量残差阵,当样本矩阵 $X$ 的列向量(即各自变量)间存在复共线性关系时, $X^T X$ 将成为病态矩阵,此时若用最小二乘回归 LSR (least squares regression)方法估计参数 $B$ 的值,将会产生很大的偏差,为此可选用主成分回归 PCR (principle component regression)和偏最小二乘回归 PLSR (partial least squares regression)方法<sup>[4]</sup>。而最近文献[5]在 PLSR 方法基础上,提出了隐变量最小二乘法 LVLS (latent variable least squares)方法,它将 PLS 的多个目标函数整合为因变量成分拟合误差一个,以此循环迭代求解自变量和因变量的成分及它们间的回归系数,该方法所建立的模型具有很高的拟合和预报精度。

化工过程大多为复杂的非线性问题,线性回归方法难以圆满解决,而人工神经网络有强大的非线性表达能力。RBFN (radial basis functions networks) 是一种性能优良的神经网络,它不仅非线性数据拟合能力强,而且构建的模型有良好的推广能力,稳定性优于常用的多层前传网络 MLFN (multilayer feedforward networks),被广泛应用于模式分类和泛函逼近。但是 RBFN 也存在着结构难定,训练时间冗长,模型表达形式复杂等缺点<sup>[4]</sup>。

集成地应用线性回归与神经网络,分别撷取它们的长处,补充各自的不足,这是当前研究的热点之一,也取得了很多成果,其中 B. Walczak 等在文献[6]中所提出的将 PLSR 与 RBFN 集成为 RBF-PLS 方法尤为引人注目,本文将在 1.1 节作进一步说明。作为探讨与尝试,笔者拟将 LVLS 与 RBFN 网相结

合,提出 RBF-LVLS 方法,并将其应用于甲醇反应器建模,而且以实例证明这一尝试是成功的。

## 1 RBF-LVLS 方法

### 1.1 RBF-PLS 方法分析

RBF-PLS 方法仍采用 RBFN 的网络结构形式,它分为三层:输入层、隐含层和输出层,各层的结点数分别为  $p, m$  和  $q$ 。RBFN 的结构如图 1 所示。

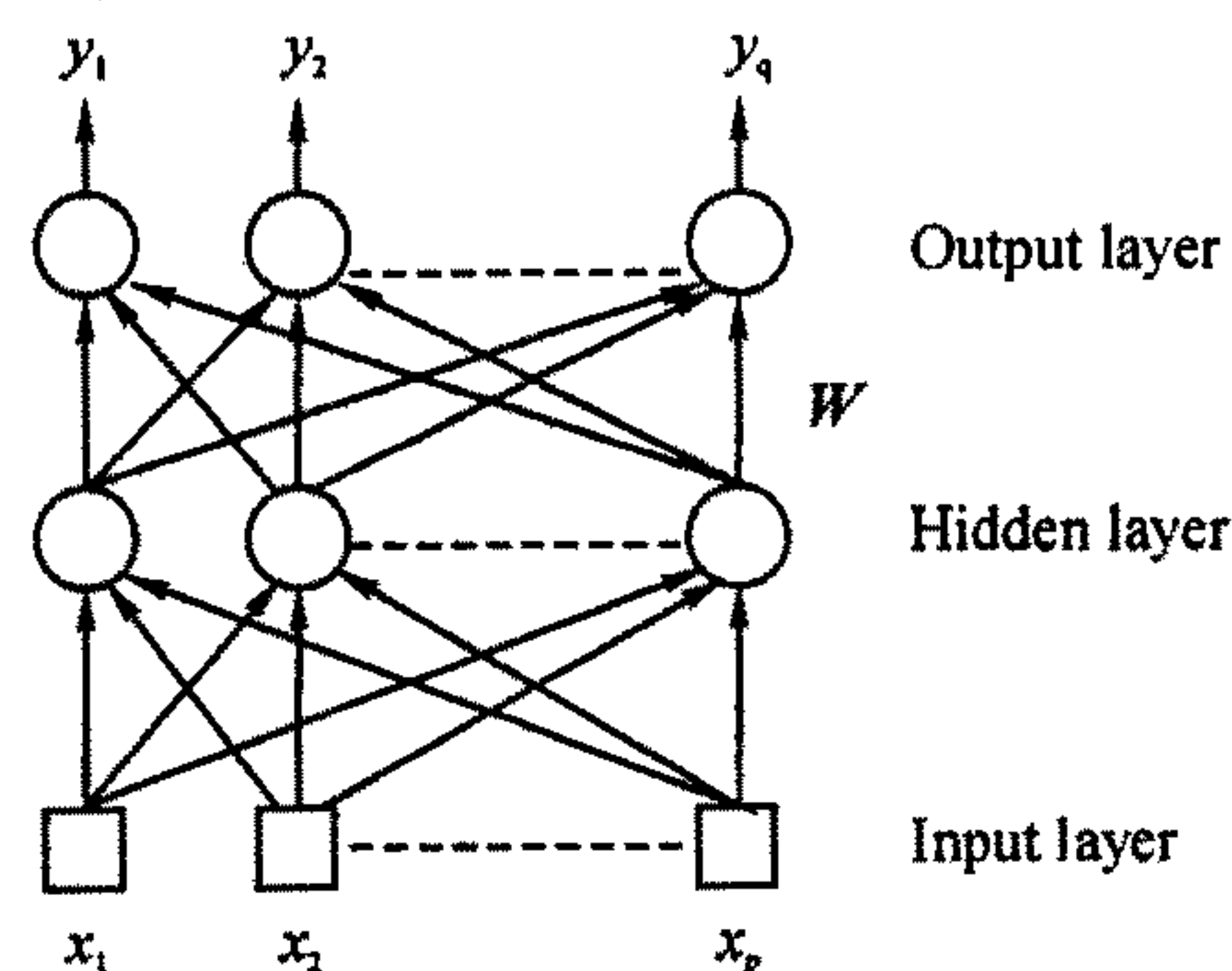


图1 RBFN 的网络结构

输入层用于接受输入数据,并前传给隐含层各结点。隐含层各结点的活化函数为径向基函数,其维数等于输入矢量的维数。设第  $i$  个输入样本为矢量  $x_i$ ,它的各分量经输入层传至第  $j$  个隐节点后,该隐节点输出将为:

$$a_{ij} = f(\|c_j - x_i\|) \quad (2)$$

式(2)中的  $\| \cdot \|$  是一种距离测度(例如欧氏距离)。常以高斯函数作为径向基函数  $f$ ,于是式(2)将为:

$$a_{ij} = \exp(-\|c_j - x_i\|^2 / \sigma_j^2) \quad (3)$$

式(3)中: $c_j$ 为高斯函数的中心, $\sigma_j$ 为宽度,这相当于将每个隐结点视为一个聚类, $c_j$ 和 $\sigma_j$ 为该聚类样本组的中心和某种标准差。输出层结点是线性的,它的活化函数为等同函数。各隐结点的  $a_{ij}$  传至第  $l$  个输出结点后,将得到该结点的输出如式(4)所示,它也是网络的最终输出:

$$\hat{y}_l(x_i) = w_{l0} + \sum_{j=1}^m w_{lj} a_{ij} \quad (4)$$

对于所有样本的输入,网络的全部输出可用矩阵形式表示为:

$$\hat{Y} = A \cdot W \quad (5)$$

式(5)中: $A$ 为隐层各结点的输出  $a_{ij}$  所构成的矩阵,



称为活化矩阵;  $W$  是隐层到输出层的权系数矩阵。

RBFN 的性能取决于它的结构和参数, 其中输入输出结点数  $p$  和  $q$  将由训练样本数据确定, 而隐结点数  $m$ 、各隐结点径向基函数的参数  $c_j$  和  $\sigma_j$  则是待定的, 它们的选择较为困难, 一般可用遗传算法、正交最小二乘学习算法等, 通过训练样本确定  $c_j$ , 然后变动  $m$  和  $\sigma_j$  直至达到最优设计。也可将隐结点视为多元高斯结点, 按梯度下降准则调整各个参数, 这类同于 BP 算法。这些方法都比较复杂, 计算量大, 且很难保证得到最优解。

Massart 等提出的 RBF-PLS 方法, 以神经网络与线性回归组合的方式很好地解决了 RBFN 的上述难题, 它将隐结点数  $m$  取为训练集的样本数  $k$ , 相当于将每个样本视为一个聚类, 样本点的值就为该聚类的中心  $c_j$ 。至于  $\sigma_j$  值, 文献[7]采用尝试方法选取。在  $m$ 、 $c_j$  和  $\sigma_j$  被选定后, 可由式(3)计算活化矩阵  $A$  的元素, 此后, 权矩阵  $W$  的确定就是求解形如式(5)的多元线性回归模型。回归问题通常要求样本数  $k$  为输入矢量维数  $m$  的 5~7 倍, 在这里却为  $k = m$ , 显然样本数  $k$  太小了, 这样极易造成自变量的复共线性, 并将样本数据中的噪声拟合进模型, 从而影响回归模型的稳定性和预报能力, 为此文献[6]采用 PLSR 方法求解。RBF-PLS 方法既采用了 ANN 的结构具有强大的非线性表达能力, 又归结为线性回归, 应用解析方法求解, 从而巧妙且有效地解决了复杂非线性系统的建模问题。

## 1.2 RBF-LVLS 方法的提出

在上述 RBF-PLS 结构中的 PLS 算法, 成分  $t_h$ ,  $u_h$  的提取是以  $\{A, Y\}$  为样本集, 以式(6)为损失目标函数, 即要求成分间的协方差最大, 而后  $t_h, u_h$  间线性回归系数以式(7)为损失目标函数, 即以最小二乘法求取  $b_h$ , 最后自变量和因变量的载荷向量  $p_h$  和  $q_h$  分别以式(8)和式(9)为目标函数计算。

$$J_1^{(PLS)} = u_h^T t_h = w_h^T A^T Y_h v_h \quad (6)$$

$$J_2 = (u_h - \hat{u}_h)^T (u_h - \hat{u}_h) = (u_h - b_h t_h)^T (u_h - b_h t_h) \quad (7)$$

$$J_3^p = \text{trace}[(A - t_h p_h^T)^T (A - t_h p_h^T)] \quad (8)$$

$$J_3^q = \text{trace}[(Y_h - u_h q_h^T)^T (Y_h - u_h q_h^T)] \quad (9)$$

文献[5]对 PLS 算法作了修正, 将式(6)和式(7)整合为  $u_h$  的拟合误差  $e_h^{(r)}(w_h^{(r)})$ , 如式(10), 其中  $r$  为循环迭代轮数。在定义  $w_h^{(r+1)} = w_h^{(r)} + \Delta w_h^{(r)}$  后, 将  $e_h^{(r)}(w_h^{(r+1)})$  作一阶泰勒级数展开, 见式(11)。现换以式(12)为目标函数, 对参数  $\Delta w_h^{(r)}$  极小化求解, 其

结果如式(13)示, 并以此循环迭代直至成分  $t_h$  收敛, 同时一并确定了  $u_h$  和  $b_h$ , 将此方法称为 LVLS 方法。

$$e_h^{(r)}(w_h^{(r)}) = u_h^{(r)} - \hat{u}_h^{(r)} = u_h^{(r)} - b_h^{(r)} X w_h^{(r)} \quad (10)$$

$$e_h^{(r)}(w_h^{(r+1)}) \approx e_h^{(r)}(w_h^{(r)}) - \left( \frac{\partial e_h^{(r)}(w_h^{(r+1)})}{\partial w_h^{(r+1)}} \right) \bigg|_{w_h^{(r+1)} = w_h^{(r)}} \Delta w_h^{(r)} = e_h^{(r)}(w_h^{(r)}) - b_h^{(r)} X w_h^{(r)} \quad (11)$$

$$J_1^{(LVLS)} = e_h^{(r)}(w_h^{(r)} + \Delta w_h^{(r)})^T e_h^{(r)}(w_h^{(r)} + \Delta w_h^{(r)}) \quad (12)$$

$$\Delta w_h^{(r)} = [X^T X]^{-1} X^T \frac{e_h^{(r)}}{b_h^{(r)}} \quad (13)$$

现将 RBF-LVLS 方法的算法步骤归结如下:

(1) 选定前  $k$  个样本构成训练样本集  $\{X_{\text{train}}, Y_{\text{train}}\}$ , 并进行变量标准化预处理;

(2) 取  $m = k, c_j = x_j (j = 1, 2, \dots, k), \sigma_j$  按式(14)计算:

$$\sigma_j^2 = \frac{0.25}{k} \sum_{i=1}^k (x_i - c_j)^T (x_i - c_j) \quad (14)$$

$\sigma_j$  可视为各训练样本与中心  $c_j$  距离的标准差的若干倍, 经筛选后本文取为 0.5;

(3) 按式(3)计算各样本在每个隐结点的输出, 构成  $k \times k$  维矩阵  $A$ , 并令  $h = 1$ ;

(4) 将  $A$  和  $Y_{\text{train}}$  组合为矩阵  $\{A, Y_{\text{train}}\}$ 。令  $r = 1$ , 以  $Y_{\text{train}}$  的某一行初始化因变量成分  $u_h^{(r)}$ , 并由此计算权向量  $w_h^{(r)} = A^T u_h^{(r)} / ((u_h^{(r)})^T u_h^{(r)})$ , 并归一化  $w_h^{(r)} = w_h^{(r)} / \|w_h^{(r)}\|$ , 再计算自变量成分  $t_h^{(r)} = A w_h^{(r)}$ ;

(5) 计算线性回归系数  $b_h^{(r)} = (t_h^{(r)})^T u_h^{(r)} / ((t_h^{(r)})^T t_h^{(r)})$ , 并由此计算  $u_h^{(r)}$  的模型拟合值  $\hat{u}_h^{(r)} = b_h^{(r)} t_h^{(r)}$ ;

(6) 由式(10), (13)计算出  $\Delta w_h^{(r)}$ , 并迭代更新为  $w_h^{(r+1)} = w_h^{(r)} + \Delta w_h^{(r)}$ ;

(7) 计算  $t_h^{(r+1)} = A w_h^{(r+1)}$ , 并在给定精度  $\epsilon$  下判断  $t_h$  是否收敛; 若收敛进入下一步, 否则  $u_h^{(r+1)} = u_h^{(r)}, r = r + 1$ , 返回第 5 步;

(8) 计算  $q_h = Y_{\text{train}}^T \hat{u}_h^{(r)} / ((\hat{u}_h^{(r)})^T \hat{u}_h^{(r)})$ ,  $p_h = A^T t_h^{(r)} / ((t_h^{(r)})^T t_h^{(r)})$ , 并归一化  $q_h = q_h / \|q_h\|, p_h = p_h / \|p_h\|$ ;

(9) 因变量矩阵的残差计算:  $Y_{\text{train}} = Y_{\text{train}} - \hat{u}_h^{(r)} q_h^T$ 。决定提取成分个数  $h$ , 如果上述输入输出模型不能满足精度要求, 返回第 4 步进入一个 PLS 成分提取。

## 2 RBF-LVLS 方法用于甲醇合成反应器软测量建模

### 2.1 模型说明及自变量、因变量选定

甲醇合成工序流程简图如图 2 所示。从净化工

段来的脱硫后的甲醇合成气,经联合压缩机的合成气压缩段压缩后与甲醇分离器来的循环气混合,然后进入循环气压缩段,升压至合成反应压力,送至入塔气预热器预热至反应温度后,由顶部进入甲醇合成塔,在甲醇合成塔列管中充填催化剂的作用下,部分CO、CO<sub>2</sub>和H<sub>2</sub>转化为甲醇,含有未能转化的气体和粗甲醇的出口气被甲醇合成塔入口气逆流冷却到甲醇露点温度以下,依次通过脱盐水预热器、循环水冷却器后,在分离器中进行气液分离,液体进入闪蒸槽,经闪蒸槽闪蒸出溶解在甲醇中的大部分气体,然后送到甲醇精馏工段。

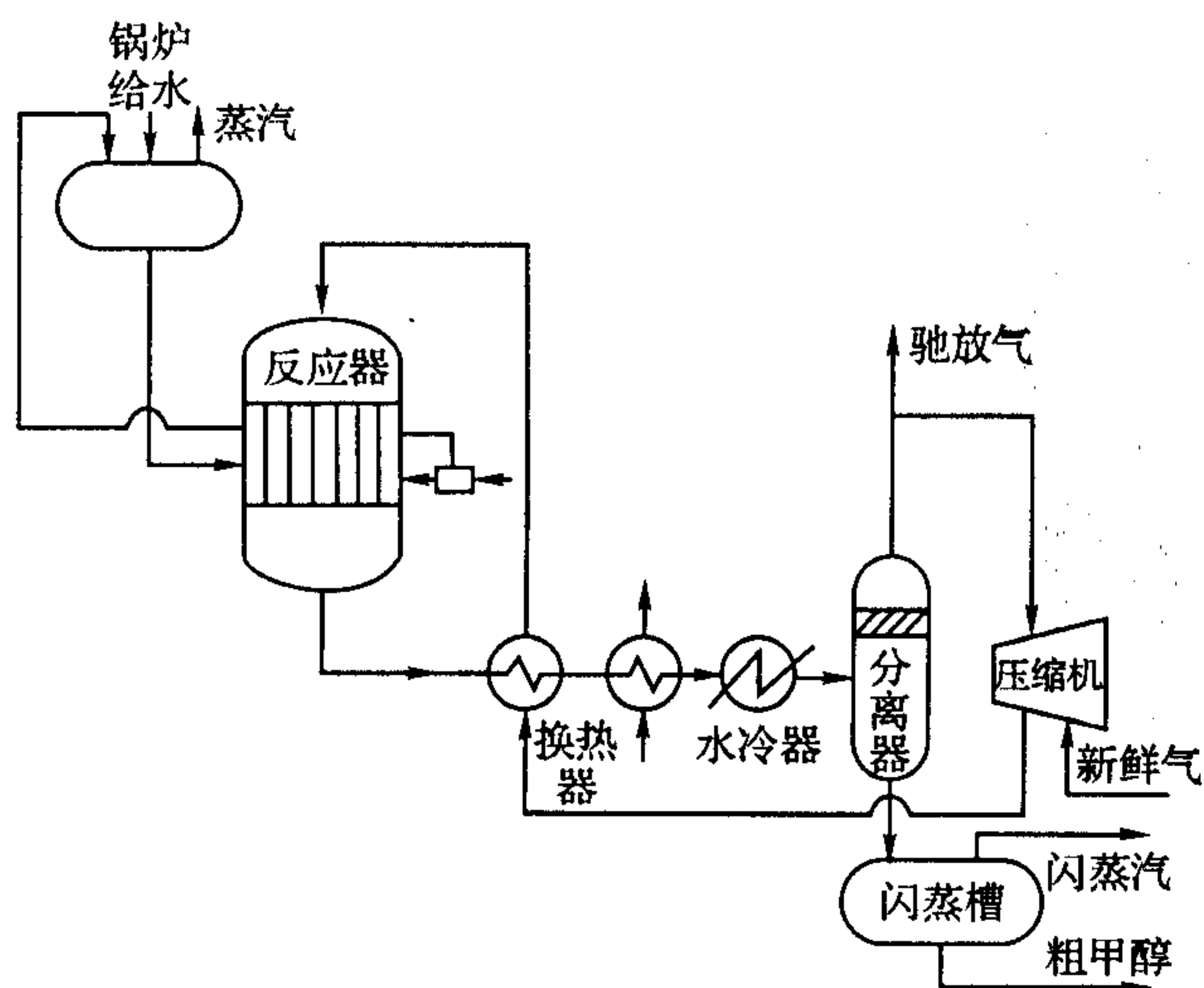


图2 甲醇合成工序流程简图

为建立甲醇合成过程的软测量模型,根据经验,并由工艺与机理分析,将稳态流程中冷却器的温度和压力、闪蒸槽的温度和压力、换热器的温度及一段时间内催化剂活性等认为基本不变,其影响忽略,而确定合成温度、合成压力、新鲜气流量、氢气、一氧化碳、二氧化碳、氮气的各自的摩尔分率及循环比等8个因素为模型自变量,以粗甲醇质量分率为因变量。为消除样本数据各变量的量纲影响,在建模前对各变量实施标准化预处理。

## 2.2 样本数据、建模的试验方式和结果

建模样本数据由DCS系统采集于实际生产装置,样本容量 $n=61$ ,维数 $p=8$ , $q=1$ ,以时间先后为序。本文以前 $k$ 组数据作为训练样本,用RBF-LVLS建模,并以第 $k+1$ 组数据为预报样本以检验模型的预测能力。分别取 $k=51,52,\dots,60$ 共进行10次试验。同时,对应地使用RBF-PLS方法建模与检验,以作比较。

在选取RBF-PLS和RBF-LVLS方法中提取的

成分数 $h$ 后,对于每一个 $k$ 值,可由训练样本构建的模型计算平均自检相对误差和预报相对误差,如式(15)(16)所示,它们可反映模型的拟合精度及预报精度。

$$MSRE = \frac{1}{k} \sum_{i=1}^k |(y_i - \hat{y}_i)/y_i| \quad (15)$$

$$PRE = |(y_{k+1} - \hat{y}_{k+1})/y_{k+1}| \quad (16)$$

式中: $y_i, y_{k+1}$ 为样本测试值, $\hat{y}_i, \hat{y}_{k+1}$ 为样本预报值。

## 2.3 分析与讨论

2.3.1 自检误差与预报误差分析 在选定两种模型的PLS成分数 $h$ 均为3后,表1为RBF-LVLS和RBF-PLS两种模型,在将 $k$ 依次从51递增至60分别算得训练样本的MSRE和测试样本因变量的预报值 $\hat{y}_{k+1}$ 。

表1 两种模型的因变量拟合和预报结果比较

$k$	$y_{k+1}/\%$	RBF-PLS		RBF-LVLS	
		MSRE/%	$\hat{y}_{k+1}/\%$	MSRE/%	$\hat{y}_{k+1}/\%$
51	95.81	1.99	93.33	0.31	94.70
52	94.80	1.86	94.19	0.32	94.76
53	94.21	1.63	93.17	0.33	93.93
54	94.79	1.61	92.01	0.33	93.93
55	95.14	1.54	92.78	0.33	94.03
56	95.17	1.24	93.66	0.34	95.14
57	93.29	0.97	94.44	0.36	94.83
58	95.34	1.44	93.41	0.34	92.66
59	94.99	1.01	95.23	0.36	94.63
60	94.22	1.08	94.75	0.36	93.73

先分析模型的拟合能力,从表1中可观察到RBF-PLS方法的MSRE值随 $k$ 的增加总体上有下降趋势,这在一定程度上显示用这种建模方法所需求的样本数略为不够,其 $k$ 从51至60共10次MSRE的均值为1.44%。与此相比,RBF-LVLS方法在各 $k$ 下所获得的MSRE值大大降低,且各MSRE的取值较为稳定,相应10次MSRE的均值为0.34%,下降至前者的23.61%。再比较预报情况,由表1可看到在各 $k$ 点下,RBF-LVLS对测试样本因变量的预报值较RBF-PLS贴近现场实测值。另外,可通过式(16)计算各 $k$ 点下预报样本的PRE值,并可由此计算 $k$ 从51增至60共10次PRE的均值,其结果RBF-PLS为1.54%,RBF-LVLS为0.90%,较前者下降了41.56%。由此可说明,RBF-LVLS较RBF-PLS,模型的拟合精度和预报精度有显著改进。



2.3.2 RBF-PLS 和 RBF-LVLS 方法的比较与分析 RBF-PLS 和 RBF-LVLS 这两种方法的共同之处,皆选用神经网络转换和实现系统的非线性,而后在求解多元线性回归模型  $Y = AZ + F$  时,又都力求在  $R(A^T)$  中选取一个子空间  $S$  为解空间,从中寻求使  $\|Y - A\hat{Z}\|$  达到最小的解  $\hat{Z}$ ,且所得隐变量之间不再存在复共线性关系。两者所不同的是, LVLS 方法对 PLS 迭代算法作了修正,将用于求取成分  $t_h, u_h$  及它们间的线性回归系数  $b_h$  的多个目标函数整合为一个,即以  $u_h^{(r)}$  的拟合误差作为目标函数,并由此计算  $\Delta w_h^{(r)}$  以修正权向量  $w_h^{(r)}$ , 然后进行循环迭代直至前后两次求取的  $t_h$  收敛,通过改用这样方式求得的成分  $t_h, u_h$  及它们间的线性回归系数  $b_h$ , 不仅其解释能力得到提高,而且成分间的拟合达到更好,从而使 RBF-LVLS 模型拥有比 RBF-PLS 更优良的拟合和泛化性能。

### 3 结 语

RBF-LVLS 方法,采用 ANN 的结构,但用数学方法直接求解,因此具有很强的非线性表达能力,又可避免冗长的训练过程和其它诸多弊端,其所建的模型以简洁的解析形式表示,计算方便又有良好的

拟合和预报精度,化工实际应用表明它是颇具特色、性能优良和适用的建模方法。

### 参考文献:

- [1] 麻林巍,倪维斗,李政,等. 用于多联产的浆态床液相法甲醇合成模拟研究[J]. 煤炭转化, 2004, 27(2): 7-12.
- [2] 顾卫忠. 年产 15 万吨甲醇装置工艺技术探讨[J]. 化肥设计, 2004, 42(4): 23-25.
- [3] 夏丕通. 合成甲醇反应机理的研究现状[J]. 合成化学, 1994, 2(1): 18-26.
- [4] 李志华,陈德钊,庄凌,等. RBF-MCSR 方法用于二甲苯异构化装置的建模[J]. 化工学报, 2002, 53(6): 627-632.
- [5] KRUGER U, WANG X, CHEN Q, et al. An alternative PLS algorithm for the monitoring of industrial process [C]//Proceedings of the American Control Conference. 2001, 6: 4455-4459.
- [6] WALCZAK B, MASSART D L. The radial basis functions-partial least squares approach as a flexible nonlinear regression technique[J]. Analytica Chimica Acta, 1996, 331: 177-185.
- [7] 庄凌,陈德钊,赵伟祥,等. RBF-CSR 方法及其应用于裂解装置建模的研究[J]. 高校化学工程学报, 2002, 16(1): 64-69.

(上接第 93 页)

- [7] BRABEC C J, SHAHEEN S E, WINDER C, et al. Effect of LiF/metal electrodes on the performance of plastic solar cells[J]. Appl Phys Lett, 2002, 80(7): 1288-1290.
- [8] DURENV-VAN J K J, DHANABALAN A, VAN-HAL P A, et al. Low-bandgap polymer photovoltaic cells[J]. Synth Met, 2001, 121: 1587-1588.
- [9] BRABEC C J, SARICIFTCI N S, HUMMELEN J C. Plastic solar cells[J]. Adv Funct Mater, 2001, 11(1): 15-26.
- [10] HUMMELEN J C, CHIRVASE D, CHIGUVARE Z, et al. Electrical and optical design and characterisation of regioregular poly(3-hexylthiophene-2, 5diyl)/fullerene-based heterojunction polymer solar cells [J]. Synthetic Metals, 2003, 138: 299-304.
- [11] NIU Junfeng, YANG Mujie, SUN Jingzhi. Luminescence Property of Anthracene-capped Poly(p-phenyleneethynylene) [J]. Acta Chimica Sinica, 2002, 60(6): 1139-1143.
- [12] NIU Junfeng, ZHAO Junzi, ZENG Ling, et al. Synthesis and Luminescence Characterization of Poly(phenylene-bisethynylene)-alt-(2,1,3-benzothiazole)s [J]. Acta Chimica Sinica, 2005, 63(13): 1220-1224.
- [13] EGBE D A M, TILLMANN H, BIRCKNER E, et al. Synthesis and properties of novel well-defined alternating PPE/PPV copolymers [J]. Macromol Chem Phys, 2001, 202(13): 2712-2726.
- [14] 牛俊峰,曾翎,李惠,等. 聚苯撑乙炔与电子受体共聚合物的合成及光伏研究[J]. 浙江科技学院学报, 2005, 16(2): 92-98.